



# Rhéologie des suspensions non newtoniennes

Thai Son Vu

► **To cite this version:**

Thai Son Vu. Rhéologie des suspensions non newtoniennes. Autre. Université Paris-Est, 2010. Français. <NNT : 2010PEST1095>. <tel-00598310>

**HAL Id: tel-00598310**

**<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00598310>**

Submitted on 6 Jun 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## **THÈSE**

Présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE  
L'UNIVERSITÉ PARIS-EST**

Spécialité : Matériaux et Structures

Présentée par

**Thai Son VU**

Sujet de la thèse

## **Rhéologie des suspensions non newtoniennes**

Soutenue à Champs-sur-Marne le 15 Novembre 2010

devant le jury composé de :

<b>Mme. Elisabeth Guazzelli</b>	Président - Rapporteur
<b>Mme. Eveline Hervé</b>	Rapporteur
<b>M. Yannick Peysson</b>	Examineur
<b>M. Fabrice Toussaint</b>	Examineur
<b>M. Guillaume Ovarlez</b>	CoDirecteur de thèse
<b>M. Xavier Chateau</b>	Directeur de thèse

Thèse préparée au sein du laboratoire Navier de l'École des Ponts ParisTech.

*à mes parents*  
*à ma fille et ma femme*

## Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein du laboratoire Navier de l'École des Ponts Paris-Tech à l'Université Paris-Est.

Je tiens tout d'abord à exprimer ma reconnaissance et ma gratitude à l'ensemble des membres du jury. J'adresse de vifs remerciements à Madame Elisabeth Guazzelli pour avoir accepté de présider le jury et d'avoir rapporté mon travail.

Je remercie très particulièrement Madame Eveline Hervé pour tout l'intérêt qu'elle a porté à mon travail en acceptant d'en être le rapporteur. Je remercie sincèrement Monsieur Yannick Peysson et Monsieur Fabrice Toussaint d'avoir accepté d'examiner mon travail et de participer dans leur Jury.

J'exprime toute ma profonde reconnaissance à Monsieur Xavier Chateau, mon directeur de thèse, pour sa gentillesse, ses conseils et son aide scientifique. Il m'a transmis, pas à pas, les compétences ainsi que la passion pour ce travail. Sans lui cette thèse n'aurait sûrement jamais abouti.

Je tiens également à remercier Monsieur Guillaume Ovarlez pour sa gentillesse, sa disponibilité et ses conseils scientifiques.

J'adresse toute ma gratitude à Monsieur François Chevoir, le directeur adjoint du laboratoire Navier, qui m'a accueilli dans un environnement de recherche jeune et dynamique.

J'exprime toute mon amitié à tous les membres du laboratoire Navier au site Kepler, qui étaient des collègues en début de thèse mais des amis maintenant.

Je remercie de tout mon cœur mes parents, ainsi que ma sœur pour leurs encouragements, leur estime et leur patience dont ils ont fait preuve pendant toutes ces longues années et ce malgré l'éloignement géographique.

Je terminerai en remerciant Lan Chi et notamment Hoang Anh pour son amour et sa patience.





---

## Résumé

---

Au cours de ce travail, nous nous sommes attachés à prédire les caractéristiques rhéologiques de suspensions de particules dans des situations non newtoniennes. Nous avons tout d'abord étudié expérimentalement le comportement rhéologique de suspensions bidisperses de particules non colloïdales et non browniennes immergées dans un fluide à seuil dans les situations où les interactions entre particules sont hydrodynamiques (mécaniques). Nous avons montré que l'influence de la polydispersité des particules sur le module élastique et le seuil de contrainte de la suspension pouvait être décrit en utilisant un modèle d'empilement développé pour les matériaux granulaires secs. Deux relations analytiques simples permettant d'estimer le module élastique et la contrainte seuil d'une suspension non newtonienne polydisperse en fonction des caractéristiques des constituants ont alors été proposées et validées.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la prédiction des caractéristiques globales de suspensions contenant une forte concentration de particules de taille différente dans le cadre d'une approche par changement d'échelle. Pour cela, nous avons mis en œuvre une approche par motifs morphologiques permettant la prise en compte de paramètres géométriques tels que la distribution de tailles des inclusions ou les distances entre particules voisines. Les résultats de ce modèle ont été validés par comparaison avec des données expérimentales de la littérature.

Nous avons ensuite montré que les modèles morphologiques permettaient également de décrire l'évolution des modules complexes d'un matériau thixotrope subissant une

transition de phase liquide-solide due à la croissance et la percolation d'un réseau de particules attractives.

Dans la dernière partie de cette étude, nous avons étudié expérimentalement l'influence de l'histoire de cisaillement sur la structuration et la déstructuration d'une suspension colloïdale thixotrope.

**Mots clés :** Méthode d'homogénéisation, rhéologie, suspension, polydispersité, fluide à seuil, thixotropie, rhéométrie, bentonite.

---

## Abstract

---

In this work, we aimed to predict the rheological properties of suspensions of particles in non-Newtonian fluids. We first studied experimentally the rheological behaviour of bidisperse suspensions of non colloidal particles and non-Brownian immersed in a yield stress fluid in situations where interactions between particles are hydrodynamic (mechanical). We showed that the influence of the polydispersity on the elastic modulus and yield stress of the suspension could be described using a packing model developed for dry granular materials. Two simple closed form estimates for both the elastic modulus and the yield stress of non-Newtonian polydisperse suspension as a function of the characteristics of the constituents were proposed and validated.

This study was then extended in a micromechanical analytical framework to predict the macroscopic characteristics of suspensions containing highly concentration of particles with different size. Our new model, called a "Morphologically Representative Pattern - Based Approach" (MRP-based approach), successfully predicts the behaviour of such materials by taking into account some geometrical parameters such as the particle size distribution or the distance between the nearest-neighbour particles. This model has been validated by a comparison with the experimental data in the literature.

We then showed that the MRP-based approach also allowed describing the evolution of complex modules of a thixotropic material undergoing a liquid-solid transition due to the growth and the percolation of an attractive particle network.

In the last part of this work, we studied experimentally the influence of the flow history on the structure of a thixotropic colloidal suspension.

**Key words :** Micromechanical approach, rheology, suspension, polydispersity, yield stress fluid, thixotropy, rheometry, bentonite.

---

## Table des matières

---

<b>Remerciements</b>	<b>3</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>23</b>
<b>1 Rhéologie des suspensions et approche micromécanique</b>	<b>27</b>
1.1 Introduction . . . . .	27
1.2 Propriétés rhéologiques d'un fluide . . . . .	27
1.2.1 Loi de comportement . . . . .	28
1.2.2 Le cas du cisaillement simple . . . . .	29
1.2.3 Principaux types de comportement . . . . .	30
1.2.3.1 Fluide newtonien . . . . .	30
1.2.3.2 Fluide à seuil . . . . .	30
1.2.3.3 Fluides à seuil thixotropes . . . . .	31
1.3 La rhéométrie . . . . .	34
1.3.1 Géométrie plan-plan . . . . .	34
1.3.2 Géométrie cône-plan . . . . .	36
1.3.3 Géométrie à cylindres coaxiaux . . . . .	36
1.3.3.1 L'écoulement Couette du fluide newtonien . . . . .	37
1.3.3.2 L'écoulement Couette dans le cas général . . . . .	39
1.3.4 Rhéologie oscillatoire . . . . .	41
1.4 Vers les propriétés rhéologiques macroscopiques d'une suspension . . . .	42
1.4.1 Suspensions newtonniennes . . . . .	42

1.4.1.1	Suspension diluée . . . . .	42
1.4.1.2	Viscosité d'une suspension concentrée . . . . .	43
1.4.2	Suspensions de particules dans un fluide à seuil . . . . .	47
1.4.2.1	Approche expérimentale . . . . .	47
1.4.2.2	Quelques modèles théoriques . . . . .	48
1.4.2.3	Modèles numériques . . . . .	49
1.5	Approche micromécanique . . . . .	50
1.5.1	Méthodologie de l'homogénéisation . . . . .	51
1.5.2	Méthode d'estimation . . . . .	52
1.6	Conclusion . . . . .	53
<b>2</b>	<b>Suspension bidisperse de particules non colloïdales dans un fluide à seuil : Approche expérimentale</b>	<b>55</b>
2.1	Introduction . . . . .	55
2.2	Homogénéisation du comportement . . . . .	60
2.2.1	Suspension de particules dans un fluide newtonien . . . . .	61
2.2.2	Suspension de particules dans un fluide de Hershel-Bulkley . .	63
2.3	Suspension monodisperse de particules dans un fluide à seuil . . . . .	66
2.3.1	Matériaux et protocole expérimental . . . . .	66
2.3.1.1	Matériaux . . . . .	66
2.3.1.2	Protocole expérimental . . . . .	67
2.3.2	Résultats expérimentaux . . . . .	69
2.3.2.1	Elasticité . . . . .	69
2.3.2.2	Seuil de contrainte . . . . .	70
2.3.2.3	Relation entre élasticité et seuil de contrainte. . . . .	70
2.4	Suspension bidisperse de particules dans un fluide à seuil . . . . .	72
2.4.1	Matériaux et méthodes . . . . .	72
2.4.1.1	Matériaux . . . . .	72
2.4.1.2	Méthode rhéologique . . . . .	75
2.4.2	Résultats . . . . .	75
2.4.2.1	Module élastique . . . . .	75
2.4.2.2	Seuil de contrainte . . . . .	76
2.4.3	Divergence des propriétés rhéologiques : Seuil de rigidité de contact . . . . .	77
2.4.3.1	Modèle d'empilement . . . . .	78

2.4.3.2	Propriétés rhéologiques en fonction de la fraction volumique solide réduite . . . . .	84
2.4.4	Analyse et discussion . . . . .	85
2.4.4.1	Module élastique . . . . .	86
2.4.4.2	Module élastique vs seuil de contrainte . . . . .	89
2.4.4.3	Seuil de contrainte . . . . .	90
2.5	Conclusions . . . . .	93
<b>3</b>	<b>Effets de la polydispersité sur les propriétés effectives d'un composite à particules : approche micromécanique</b>	<b>95</b>
3.1	Introduction . . . . .	95
3.2	Homogénéisation des milieux élastiques hétérogènes . . . . .	98
3.2.1	Notion de VER et de grandeurs moyennes . . . . .	98
3.2.2	Homogénéisation . . . . .	99
3.2.2.1	Approche en déformation . . . . .	100
3.2.2.2	Lemme de Hill-Mandel . . . . .	101
3.2.3	Formulation variationnelle . . . . .	102
3.2.4	Bornes de Voigt et de Reuss . . . . .	103
3.2.5	Bornes de Hashin et Shtrikman . . . . .	105
3.2.6	Problème d'inclusions . . . . .	106
3.2.6.1	Polarisation . . . . .	107
3.2.6.2	Problème d'Eshelby inhomogène . . . . .	107
3.2.6.3	Méthodes d'estimation des modules homogénéisés . . . . .	108
3.3	Approche par motifs . . . . .	113
3.3.1	Motifs classiques . . . . .	113
3.3.2	Motifs généralisés . . . . .	114
3.3.2.1	Les motifs sont dispersés dans une matrice . . . . .	116
3.3.2.2	Schéma autocohérent généralisé . . . . .	117
3.4	Seuil de percolation et effet de la polydispersité . . . . .	117
3.4.1	Schéma à un motif - Assemblage de sphères composites de Hashin . . . . .	118
3.4.2	Schéma à deux motifs pour le cas des particules monodisperses	120
3.4.3	Schéma à deux motifs généralisé pour le cas général . . . . .	123
3.4.4	Application et validation expérimentale . . . . .	127
3.4.4.1	Composite à particules indéformables . . . . .	127
3.4.4.2	Validation expérimentale pour le cas général . . . . .	131



3.5	Conclusions . . . . .	133
3.6	Annexe A . . . . .	134
3.6.1	Problème élémentaire : inclusion sphérique inhomogène . . .	134
3.6.2	Coefficient de l'équation (3.91) . . . . .	136
<b>4</b>	<b>Approche par motif morphologique des transitions liquide-solide d'un fluide thixotrope</b>	<b>141</b>
4.1	Introduction . . . . .	141
4.2	Transition liquide-solide d'une bentonite . . . . .	146
4.3	Matériaux . . . . .	146
4.4	Procédure de mesure . . . . .	147
4.5	Observations expérimentales . . . . .	148
4.6	Modélisation simplifiée de la transition liquide-solide d'une bentonite	149
4.7	Modélisation micromécanique de la transition liquide-solide . . . . .	153
4.8	Conclusion . . . . .	157
<b>5</b>	<b>Etude expérimentale de la structuration et de la déstructuration d'un matériau thixotrope</b>	<b>161</b>
5.1	Introduction . . . . .	161
5.2	Matériaux et Procédure expérimentale . . . . .	163
5.2.1	Matériaux . . . . .	163
5.2.2	Procédure expérimentale . . . . .	163
5.3	Résultats expérimentaux . . . . .	166
5.3.1	Suspension colloïdale de particules d'argile . . . . .	166
5.3.2	Suspension de particules non colloïdales dans un fluide colloïdal thixotrope . . . . .	171
5.3.2.1	Etude du saut de taux de cisaillement . . . . .	171
5.3.2.2	Comparaison avec la bentonite . . . . .	173
5.4	Conclusions . . . . .	176
	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>179</b>

---

## Table des figures

---

1.1	Cisaillement entre deux plans parallèles. Plan supérieur en mouvement.	29
1.2	Relation entre le gradient de vitesse et la contrainte pour différents types de fluide. . . . .	32
1.3	Schéma de principe du comportement d'un fluide à seuil thixotrope (Figure extraite de Mahaut [51]) . . . . .	33
1.4	Géométrie plan-plan . . . . .	35
1.5	Géométrie cône-plan . . . . .	37
1.6	Géométrie Couette à cylindres coaxiaux . . . . .	38
1.7	Estimation de la viscosité macroscopique relative en fonction de la fraction volumique en particules pour les suspensions newtoniennes. .	46
1.8	Similitude entre le problème solide et le problème liquide . . . . .	51
2.1	a) Courbe d'écoulement de l'émulsion pure, et comportement lors de paliers ascendants et descendants de taux de cisaillement pour une suspension de 20 % de billes de polystyrène (80 $\mu\text{m}$ ) dans une émulsion. (figures extraites de Mahaut [51]) . . . . .	67
2.2	Evolution du module élastique réduit en fonction de la fraction volumique pour les matériaux étudiés. Borne inférieure d'Hashin-Shtrikman (Hashin et Shtrikman [43]), ajustement par une loi de Krieger-Dougherty $G'(\phi)/G' = (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}$ avec $\phi_m = 0.57$ . (Figure extraite de Mahaut et al. [52]) . . . . .	69

2.3	a) Mesures de seuil effectuées à vitesse faible $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$ pour des billes de polystyrène de $140 \text{ }\mu\text{m}$ plongées à diverses fractions volumiques dans une émulsion. b) Même chose dans une suspension de bentonite. (Figure extraite de Mahaut [51]) . . . . .	71
2.4	Evolution du seuil réduit en fonction de la fraction volumique pour l'ensemble des matériaux étudiés. On trace également l'évaluation de l'estimation sécante et un ajustement des données par une loi $\tau_c(\phi)/\tau_c = \sqrt{(1-\phi)(1-\phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}}$ avec $\phi_m = 0.57$ . (Figure extraite de Mahaut et al. [52]) . . . . .	72
2.5	Module élastique réduit modifié $\sqrt{(1-\phi)G'(\phi)/G'} - 1$ en fonction du seuil réduit $\tau_c(\phi)/\tau_c - 1$ pour les diverses suspensions étudiées expérimentalement. (Figure extraite de Mahaut et al. [52]) . . . . .	73
2.6	Contrainte de cisaillement en fonction de déformation en appliquant un taux de cisaillement faible $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$ pour une émulsion pure (carré) et pour une suspension bidisperse (étoile) de 30% de bille polystyrène de diamètre $80 \text{ }\mu\text{m}$ mixé avec 70% de bille polystyrène de diamètre $315 \text{ }\mu\text{m}$ avec $\phi = 0.3$ dans la même émulsion . . . . .	74
2.7	Module élastique adimensionnel $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'(0)$ de suspensions bidisperses en particules sphériques en fonction de la fraction volumique en particules pour différents rapports de taille $\lambda$ et différentes valeurs de la proportion volumique en petites particules $\xi$ . La ligne continue représente l'équation (2.26). La ligne pointillée représente la borne inférieure de Hashin-Shtrikman. . . . .	77
2.8	Seuil de contrainte adimensionnel $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c(0)$ mesurées sur des suspensions bidisperses de particules sphériques en fonction de la fraction volumique en particules pour différents rapports de tailles $\lambda$ et différentes valeurs de la proportion volumique en petites particules $\xi$ . La ligne continue représente la loi $\tau_c(\phi)/\tau_c(0) = \sqrt{(1-\phi)(1-\phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}}$ avec $\phi_m = 0.57$ proposée par Chateau et al. [18] pour les suspensions monodisperses. . . . .	79
2.9	Effet de desserrement dû à l'ajout d'une petite particule dans un empilement de grosses particules. . . . .	81
2.10	Effet de paroi dû à l'insertion d'une grosse particule dans un empilement de fines particules. . . . .	82

2.11	Valeurs du seuil de rigidité de contact en fonction du paramètre $\xi$ , (proportion volumique relative en petites particules dans le mélange granulaire) pour différentes valeurs du rapport de taille $\lambda$ . . . . .	83
2.12	Module élastique adimensionné $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$ en fonction de la fraction volumique réduite de particules $\phi/\phi_m$ pour toutes les suspensions bidisperses étudiées. Les seuils de rigidité de contact $\phi_m$ ont été calculés en utilisant les équations (2.28) – (2.32) du modèle modifié de de Larrard. . . . .	85
2.13	Seuil de contrainte réduit $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$ en fonction de la fraction volumique réduite de particules $\phi/\phi_m$ pour toutes les suspensions bidisperses étudiées. Les seuils de rigidité de contact $\phi_m$ ont été calculés en utilisant les équations (2.28) – (2.32) du modèle modifié de de Larrard. . . . .	86
2.14	Module élastique adimensionné $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$ en fonction de la proportion volumique en petites particules $\xi$ pour des suspensions de billes de polystyrène de diamètre 80 $\mu\text{m}$ et 315 $\mu\text{m}$ avec une fraction volumique en particules $\phi = 0.4$ (triangle) et $\phi = 0.5$ (carré). La ligne pointillée (resp. continue) représente l'équation (2.33) calculée pour $\phi = 0.4$ (resp. $\phi = 0.5$ ). Les seuils de rigidité de contact $\phi_m$ ont été calculés en utilisant les équations (2.28) – (2.32) du modèle modifié de de Larrard. . . . .	88
2.15	Seuil de contrainte adimensionné modifié $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$ en fonction de $\sqrt{(1 - \phi)G'(\phi, \lambda, \xi)/G'}$ modifiée pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapports de taille $\lambda$ et toutes proportions volumiques en petites particules $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne $y = x$ représente la relation théorique (2.22) . . . .	91
2.16	Seuil de contrainte adimensionné modifié $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$ en fonction de $\sqrt{(1 - \phi)(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}}$ modifiée pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapports de taille $\lambda$ et toutes proportions volumiques en petites particules $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne $y = x$ représente la relation théorique (2.37) . . . .	92
2.17	Module élastique adimensionné $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$ en fonction de $(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}$ pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapport de taille $\lambda$ et toutes proportions volumiques en petites particules $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne $y = x$ représente la relation théorique (2.33) . . . . .	93

3.1	Un motif morphologique généralisant l'assemblage de sphères composites de Hashin . . . . .	97
3.2	Conditions homogènes au contour . . . . .	101
3.3	Motif morphologique représentatif classique . . . . .	114
3.4	Motif morphologique représentatif généralisé . . . . .	115
3.5	Assemblage de sphères composites de Hashin . . . . .	119
3.6	Effet de l'empilement modélisé par le schéma à deux motifs . . . . .	121
3.7	Comparaison entre la prédiction théorique du schéma à deux motifs classique et les données expérimentales du module élastique obtenus par Mahaut [52]. Le seuil de rigidité de contact $\phi_m$ est égal à 0.57. . . . .	122
3.8	Effets de la polydispersité et du seuil de rigidité de contact modélisés par le schéma à deux motifs généralisé . . . . .	124
3.9	Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en particules pour différents rapports de taille $\lambda$ et différentes valeurs de la proportion volumique en petites particules $\xi$ pour les suspensions bidisperses étudiées dans le chapitre 2. Les lignes continues représentent les prédictions théoriques du schéma à deux motifs généralisé. La ligne pointillée en bas représente la borne inférieure de Hashin-Shtrikman et la ligne pointillée en haut représente l'estimation auto-cohérente classique. . . . .	128
3.10	Module élastique adimensionné $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$ en fonction de $G^{hom}/G'$ pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapport de taille $\lambda$ et toutes proportions volumiques en petites particules $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne $y = x$ représente les estimations théoriques. . . . .	129
3.11	Seuil de contrainte adimensionné $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$ en fonction de $\tau_c^{hom}/\tau_c$ pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapport de taille $\lambda$ et toutes proportions volumiques en petites particules $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne $y = x$ représente les estimations théoriques. . . . .	130
3.12	Module d'Young effectif $E^{hom}$ en fonction de la fraction volumique en particules $\phi$ pour le cas d'une matrice en aluminium. . . . .	131
3.13	Module d'Young effectif $E^{hom}$ en fonction de la fraction volumique en particules $\phi$ pour le cas l'argent est le matériau de la matrice. . . . .	132
3.14	Problème élémentaire. . . . .	134

4.1	Transition liquide-solide d'un fluide à seuil simple dans l'espace des contraintes. . . . .	142
4.2	Exploration de configurations de plus basses énergie par les systèmes colloïdaux répulsifs . . . . .	143
4.3	Evolution des configurations des particules d'une suspension de particules colloïdales attractives laissée au repos . . . . .	144
4.4	Plaquettes d'argile en suspension . . . . .	145
4.5	Agrégat de particules d'argile . . . . .	146
4.6	Module élastique et module visqueux (ligne bleu et rouge) de la suspension de bentonite ( $\phi = 5\%$ ) en fonction du temps $t_\psi$ après un fort précisaillement pour $\tau/\tau_c = 87\%$ . La ligne verte représente la viscosité apparente divisée par un facteur 3.5. $\psi$ est le temps critique de la transition liquide-solide. La ligne pointillée définit la frontière entre le régime liquide et le régime solide. La figure insérée présente la déformation en fonction du temps (figure extraite de Ovarlez et Coussot [70]) . . . . .	149
4.7	Modèle unidimensionnel de fluide de Maxwell . . . . .	150
4.8	Evolution de $G'$ , $G''$ et $\omega\eta$ en fonction du rapport $\eta/G$ pour un modèle de fluide de Maxwell . . . . .	152
4.9	Prise en compte du phénomène d'agrégation des particules argileuses au moyen d'un schéma morphologique à un motif . . . . .	155
4.10	Evolution des modules $G'$ (bleu), $G''$ (rouge) et du produit $\omega \times \eta^{hom}$ (vert) pour le modèle de sphères composites de Hashin en fonction de la fraction volumique en agrégats. Courbes obtenus pour $G = 2000$ Pa dans les agrégats et $\eta\omega = 5$ Pa dans le fluide. . . . .	156
5.1	Représentation schématique de la réponse temporelle en contrainte de cisaillement lorsqu'un matériau thixotrope est soumis à un saut de taux de cisaillement (figure extraite de Barnes [4]) . . . . .	165
5.2	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement lorsqu'une suspension bentonite contenant 3.5% de particules est soumise à des sauts de taux de cisaillement d'un palier $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$ à un palier de valeur $\dot{\gamma}_2$ comprise entre $3 \text{ s}^{-1}$ et $90 \text{ s}^{-1}$ . Les expériences ont été effectuées dans une géométrie Plan-Plan. . . . .	167

5.3	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement lorsqu'une suspension bentonite concentrée à 3.5% est soumise à des sauts de taux de cisaillement avec $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans une géométrie Cône-Plan. . . . .	168
5.4	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts croissants de taux de cisaillement avec $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Cône-Plan et Plan-Plan. . . . .	169
5.5	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts décroissants de taux de cisaillement avec $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Cône-Plan et Plan-Plan. . . . .	170
5.6	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts de taux de cisaillement avec $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Plan-Plan. . . . .	171
5.7	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts croissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de $\dot{\gamma}_1$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Cône-Plan et Plan-Plan. . . . .	172
5.8	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite est soumise à des sauts de taux de cisaillement pour différentes valeurs de $\dot{\gamma}_1$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Plan-Plan. . . . .	173
5.9	Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite et une bentonite sont soumises à des sauts décroissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de $\dot{\gamma}_1$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées en utilisant des les géométries Plan-Plan. . . . .	175

---

5.10 Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite et une bentonite sont soumises à des sauts croissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de $\dot{\gamma}_1$ et différentes valeurs de $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Plan-Plan. . . . .	176
---	-----





---

## Liste des tableaux

---

2.1	Module élastique adimensionnel $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'(0)$ en fonction de la fraction volumique en particules $\phi$ pour tous les matériaux étudiés.	76
2.2	Contrainte seuil adimensionnelle $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c(0)$ en fonction de la fraction volumique de particules $\phi$ pour toutes les suspensions étudiées.	78
2.3	Module élastique adimensionnel $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$ et seuil de contrainte adimensionnel $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$ en fonction de la proportion volumique en petites particules $\xi$ , pour $\lambda = 3.94$ .	89



---

## Introduction générale

---

Le comportement des suspensions de particules dans un fluide non newtonien a été largement étudié par de nombreux chercheurs aussi bien d'un point de vue expérimental que d'un point de vue théorique. On rencontre couramment des suspensions qu'elles soient obtenues dans un context industriel (bétons, fluides de forage pour l'évacuation de déblais, pâtes alimentaires, cosmétiques,...) ou qu'elles soient « naturelles » : miel, laves torrentielles, boues, etc. Dans la plupart des situations d'intérêt pratique, ces matériaux présentent les propriétés caractéristiques des fluides à seuil : ils se comportent comme des solides viscoélastiques tant qu'ils sont soumis à des contraintes dont l'intensité est inférieure à une valeur seuil alors qu'ils s'écoulent comme des fluides quand la contrainte appliquée dépasse cette valeur seuil.

A titre d'exemple, nous pouvons citer le béton qui est le matériau le plus utilisé dans le monde en raison de sa facilité de mise en œuvre à l'état frais et de sa résistance à l'état durci. Des nouveaux bétons ont été développés au cours des trente dernières années (bétons Hautes Performances, Bétons AutoPlaçants,...) permettant d'optimiser et de faciliter leur mise en œuvre et d'augmenter leur maniabilité grâce à une forte diminution de leur seuil de contrainte. En même temps, ces bétons modernes présentent un caractère thixotrope fortement marqué : leurs propriétés rhéologiques évoluent au cours du temps et en fonction de l'histoire de l'écoulement qu'ils ont subie. L'arrivée de ces nouveaux matériaux pose de nouveaux problèmes : blocage de l'écoulement lors de mise en place, problème de redémarrage du pompage après un temps d'arrêt prolongé, sédimentation des granulats les plus lourds lors de la

mise en place entraînant une anisotropie et une inhomogénéité du matériau, etc.

La possibilité de prédire les propriétés rhéologiques d'une suspension en fonction de sa composition apparaît comme un outil essentiel pour l'optimisation de ces procédés. À côté de la voie expérimentale, on cherche donc à construire des outils permettant d'en modéliser le comportement. À l'heure actuelle, une grande tendance consiste à modéliser numériquement le comportement des constituants et leurs interactions pour identifier les caractéristiques globales de la suspension. Même si cette voie paraît très prometteuse, les difficultés rencontrées pour sa mise en oeuvre pratique (identification des comportements, des interactions, puissance informatique nécessaire...) font qu'elle ne permet toujours pas d'étudier des situations d'intérêt pratique. Il reste donc nécessaire de construire des estimations analytiques ou semi-analytiques permettant d'évaluer rapidement les caractéristiques rhéologiques d'une suspension.

Le travail présenté dans cette thèse propose d'étudier, en général, le comportement d'une suspension de particules dans un fluide incompressible en découpant d'une part les interactions dues aux particules de petites tailles (inférieure à la dizaine de microns) dites colloïdales et d'autre part celles dues aux particules de taille plus grande, dites particules non colloïdales. Cette séparation d'échelle nous permet d'identifier à la fois les interactions auxquelles peuvent être soumises les particules colloïdales qui conduisent le matériau à un comportement à seuil (Van der Waals, colloïdale, mouvement brownien, etc) ou encore les interactions concernant les particules non colloïdales (hydrodynamique, friction, frottement, etc).

Nous nous sommes intéressés aux situations pour lesquelles il existe une séparation de taille bien marquée entre les particules colloïdales et les particules non colloïdales présentes dans la suspension. Nous pouvons alors considérer la suspension concentrée comme un matériau de particules non colloïdales immergées dans une pâte dont le comportement est connu. Il est alors possible de prédire le comportement global de la suspension à partir des propriétés de la pâte et des caractéristiques des particules non colloïdales. Partant des résultats déjà disponibles dans le cas d'une suspension de particules monodisperses, on a étudié l'influence de la polydispersité sur le comportement macroscopique d'une suspension de particules dans un fluide à seuil.

Comme l'étude du comportement rhéologique du béton nécessite de prendre en

compte le caractère thixotrope du matériau. Nous avons ensuite étudié le comportement d'une suspension de grosses particules dans un fluide thixotrope.

Le premier chapitre présente la problématique de manière générale ; Il a pour objet de décrire les buts et objectifs de ce travail. Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons les éléments principaux de rhéologie concernant les différents types de comportement d'un fluide ainsi que les résultats de rhéométrie nécessaires à la caractérisation de leur comportement. Différents modèles permettant de prédire la viscosité globale d'une suspension de particules dans un fluide newtonien seront présentés. Nous présentons ensuite les différentes approches (expérimentale, théorique et numérique) visant à étudier le comportement macroscopique d'une suspension de particules dans un fluide à seuil. La dernière partie de ce chapitre introductif est consacrée à la présentation des principales caractéristiques des méthodes d'homogénéisation permettant d'obtenir une description homogène équivalente du comportement d'un matériau hétérogène.

Dans le second chapitre, nous caractérisons expérimentalement et théoriquement le module d'élasticité et le seuil de contrainte d'une suspension bidisperse isotrope de particules non colloïdales dispersées dans un fluide à seuil. Pour cela, nous présentons les procédures expérimentales et résultats principaux obtenus avec des suspensions monodisperses par Mahaut et al. [52]. Nous rappelons également les principaux résultats obtenus par l'approche d'homogénéisation non-linéaire pour les suspensions isotropes de particules indéformables dans un fluide de Hershel-Bulkley. (Chateau et al. [18].) Nous montrons que l'effet de la polydispersité peut être modélisé par un modèle d'empilement des particules sèches qui permet d'estimer la fraction volumique maximale d'empilement. Nous proposons finalement des estimations globales pour le module élastique et le seuil de contrainte d'une telle suspension.

Dans le troisième chapitre, nous développons une approche par changement d'échelle pour étudier le comportement macroscopique d'un matériau composite à particules. Ces résultats peuvent s'appliquer à l'homogénéisation d'une suspension de particules polydisperses dans un fluide newtonien. Nous montrons tout d'abord que les estimations d'homogénéisation classiques ne permettent pas de prédire les propriétés macroscopiques d'une suspension de particules dans toutes les situations d'intérêt pratique. En nous basant sur une approche par motifs morphologiques, un nouveau schéma et des nouvelles estimations micromécanique ont été proposées pour prédire

les modules effectifs d'un composite de particules bidisperses distribuées dans une matrice élastique. Le modèle proposé a été validé expérimentalement en utilisant des données expérimentales présentées dans le chapitre 2 et des données collectées dans la littérature.

Le quatrième chapitre est consacré à la modélisation via une approche par motifs morphologiques de l'évolution des modules complexes d'un matériau thixotrope subissant une transition de phase liquide-solide due à la croissance et la percolation d'un réseau de particules attractives. Le comportement microscopique et l'origine physique d'un matériau thixotrope au repos sont tout d'abord présentés dans l'objectif de mettre en évidence la transition liquide-solide de tel matériau. Nous présentons ensuite les observations expérimentales de transition de phase liquide-solide rapportées dans le travail de Ovarlez et al. [70]. Nous montrons dans la suite de chapitre qu'un schéma à un motif permet de décrire parfaitement la microstructure du matériau. Ce chapitre se termine par une comparaison entre la modélisation micromécanique et les observations expérimentales de la transition liquide-solide qui démontre la pertinence de l'approche par motifs morphologiques dans cette situation.

Le dernier chapitre a pour objet l'étude expérimentale de l'influence de l'histoire de cisaillement sur la structuration et la déstructuration d'une suspension colloïdale thixotrope. Nous décrivons tout d'abord le protocole expérimental utilisé pour étudier l'influence de sauts de taux de cisaillement sur le taux de structuration et de déstructuration d'un matériau thixotrope. Cette étude se poursuit en étudiant le comportement d'une suspension de particules non colloïdales dans un fluide thixotrope soumis aux mêmes sollicitations. Ces résultats expérimentaux permettent de démontrer la validité des outils de changement d'échelles utilisés dans le reste du mémoire et d'en généraliser la portée.

Enfin, nous présentons les conclusions générales que nous avons tirées de ce travail, proposons quelque perspectives et développements possibles et recensons les questions restant ouvertes.

# CHAPITRE 1

---

## Rhéologie des suspensions et approche micromécanique

---

### 1.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre introductif est triple. D'abord, il fixe la plupart des notions et notations qui seront utilisées dans ce mémoire, décrit les objectifs de notre travail, ainsi que l'environnement dans lequel il se situe. Ensuite, il introduit l'état des connaissances du point de vue théorique sur la rhéologie des fluides complexes et du point de vue expérimental sur le comportement rhéologique des suspensions concentrées. Enfin, ce chapitre se termine par une présentation des outils de la micromécanique utiles pour modéliser le comportement des suspensions.

### 1.2 Propriétés rhéologiques d'un fluide

La connaissance et la modélisation de l'écoulement de fluides complexes est un objectif intéressant et important. La rhéologie<sup>1</sup> est une science utilisée dans des domaines d'application extrêmement variés. En effet, les domaines industriels dans lesquels la rhéologie est utilisée couramment vont de l'industrie agroalimentaire à l'industrie pétrolière en passant par la cosmétique, l'industrie du bois, l'industrie des colles ou le génie civil. La rhéologie est également utilisée pour décrire des écoulements

---

<sup>1</sup>Rhéologie : « *étude de la déformation et de l'écoulement de la matière sous l'effet d'une contrainte appliquée* » - Eugène Bingham 1939



naturels (neige ou boues torrentielles).

### 1.2.1 Loi de comportement

Pour identifier le comportement du fluide et le mouvement des éléments d'un fluide les uns par rapport aux autres, on se place dans le cadre de la mécanique des milieux continus qui exprime la loi de comportement, c'est à dire la relation entre les champs de contraintes appliquées et de déformations sous forme tensorielle. Le tenseur des contraintes de Cauchy,  $\boldsymbol{\sigma}$ , peut être décomposé en deux termes :

- la pression hydrostatique qui ne provoque pas la déformation du fluide (hypothèse d'incompressibilité).
- la partie déviatorique des contraintes,  $\boldsymbol{\tau}$ , qui provoque la déformation du matériau.

On a :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\tau} \quad \text{avec} \quad p = -\frac{1}{3}\text{tr}\boldsymbol{\sigma} \quad (1.1)$$

où  $p$  désigne la pression hydrostatique et  $\boldsymbol{\delta}$  le tenseur identité du second ordre,  $\text{tr}$  l'opérateur de trace.

Dans le cadre de l'étude des lois de comportement, il est naturel de s'intéresser au tenseur des taux de déformation  $\boldsymbol{d}$ , la partie symétrique du gradient de vitesse  $\nabla \underline{u}$  :

$$\boldsymbol{d} = \frac{1}{2} (\nabla \underline{u} + \nabla \underline{u}^T) \quad (1.2)$$

avec  $\underline{u}$  la vitesse d'un point matériel en description eulérienne,  $\nabla$  l'opérateur gradient et  $T$  la transportation du tenseur gradient.

Comme on ne s'intéresse ici qu'à des fluides incompressibles, on a en tout point la condition :

$$\text{tr} \boldsymbol{d} = \nabla \cdot \underline{u} = 0 \quad (1.3)$$

La loi de comportement d'un matériau s'exprime sous la forme d'une relation reliant le tenseur des contraintes en chaque point au taux de déformation et à un certain nombre de variables décrivant l'état du matériau. De façon générale, ces variables d'état doivent être de nature tensorielle pour rendre compte de l'anisotropie induite par les différentes histoires d'écoulement. Pour des raisons pratiques, on fait souvent l'hypothèse qu'une unique variable scalaire d'état,  $\zeta$ , permet de caractériser l'état

du fluide (Coussot et Ancey [23]). La loi de comportement s'écrit alors :

$$\boldsymbol{\sigma} = f(\boldsymbol{d}, \zeta) \quad (1.4)$$

Une équation supplémentaire décrivant les variations de  $\zeta$  en fonction de l'histoire de l'écoulement doit être ajoutée à (1.4) pour que la description du comportement soit complète.

### 1.2.2 Le cas du cisaillement simple

On se place souvent dans la situation du cisaillement simple entre deux plans parallèles (cf. Fig. 1.1). Dans ce cas, la vitesse d'un point matériel au sein du fluide s'écrit :

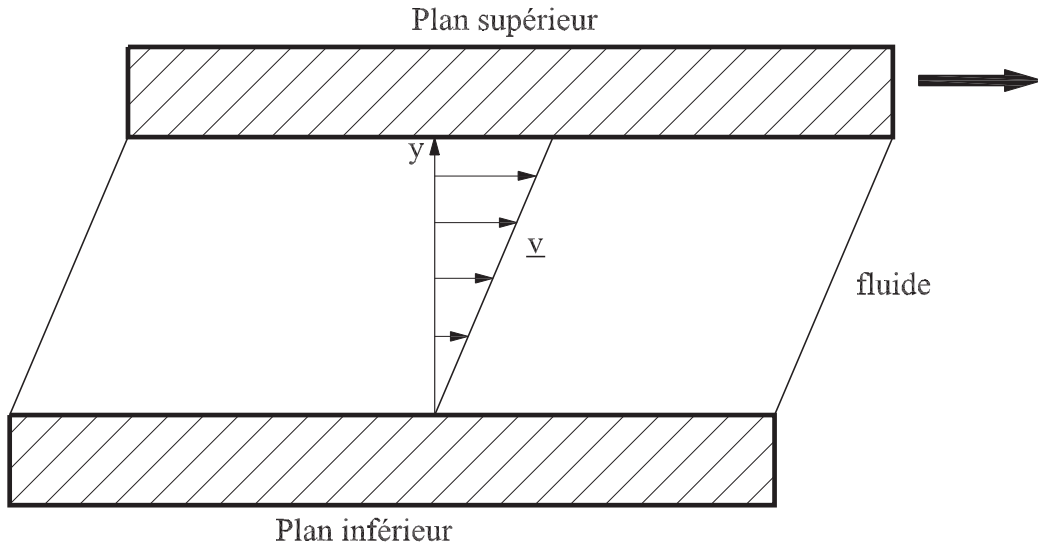


FIG. 1.1 – Cisaillement entre deux plans parallèles. Plan supérieur en mouvement.

$$\underline{V} = \dot{\gamma} y \underline{e}_x \quad (1.5)$$

où  $\dot{\gamma}$  désigne le gradient de vitesse. On a alors le tenseur du taux de déformation à l'échelle microscopique dans le fluide :

$$\mathbf{d} = \frac{1}{2} \dot{\gamma} (\underline{e}_x \otimes \underline{e}_y + \underline{e}_y \otimes \underline{e}_x) \quad (1.6)$$

Pour le fluide visqueux, on a alors :

$$\boldsymbol{\tau} = 2\eta \mathbf{d} = \eta \dot{\gamma} (\underline{e}_x \otimes \underline{e}_y + \underline{e}_y \otimes \underline{e}_x) \quad (1.7)$$

où  $\eta$  désigne la viscosité du fluide. On vérifie donc bien que :

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = \operatorname{div} (\boldsymbol{\tau} - p \boldsymbol{\delta}) = 0 \quad \text{si } p \text{ uniforme} \quad (1.8)$$

La contrainte tangentielle de cisaillement est définie par  $\tau_{xy}$  et sera par la suite notée simplement :  $\tau = \tau_{xy} = \sigma_{xy}$ . On a une relation suivante pour le cas du cisaillement simple :

$$\tau = \eta \dot{\gamma} \quad (1.9)$$

### 1.2.3 Principaux types de comportement

De nombreuses lois de comportement donnant la relation entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement ont été proposées pour décrire les comportements rhéologiques couramment observés expérimentalement.

#### 1.2.3.1 Fluide newtonien

Le comportement le plus simple est obtenu pour les fluides newtoniens. Ce sont des fluides ayant une viscosité constante comme les huiles pures, l'eau, les alcools... Cette loi s'écrit :

$$\mathbf{S} = 2\eta \mathbf{D} \quad (1.10)$$

Dans le cas d'un cisaillement simple, on a donc :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (1.11)$$

où  $\eta$  désigne la viscosité du fluide.

#### 1.2.3.2 Fluide à seuil

De nombreux matériaux du Génie Civil sont des suspensions concentrées de particules de différentes tailles immergées dans un fluide (bétons et plâtres frais, boues

de forage, boues naturelles...). Dans la plupart des situations d'intérêt pratique, ces matériaux présentent les propriétés caractéristiques des fluides à seuil : ils se comportent comme des solides viscoélastiques tant qu'ils sont soumis à des contraintes dont l'intensité est inférieure à une valeur seuil alors qu'ils s'écoulent comme des fluides lorsque l'intensité des contraintes appliquées dépassent la valeur seuil. On ne présente ici que les lois les plus couramment utilisées.

– Le fluide de Bingham obéit à la loi de comportement suivante :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \boldsymbol{\tau} = [\tau_c + 2\eta\sqrt{d_{II}}] \frac{\mathbf{d}}{\sqrt{d_{II}}} & \text{si } \sqrt{\tau_{II}} > \tau_c \\ \mathbf{d} = \mathbf{0} & \text{si } \sqrt{\tau_{II}} \leq \tau_c \\ \text{tr } \mathbf{d} = 0 \end{array} \right. \quad (1.12)$$

où  $\eta$  désigne la viscosité plastique et  $\tau_c$  la contrainte seuil.

– La loi de comportement d'un fluide de Herschel-Bulkley s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \boldsymbol{\tau} = [\tau_c + 2^n\eta\sqrt{d_{II}}^n] \frac{\mathbf{d}}{\sqrt{d_{II}}} & \text{si } \sqrt{\tau_{II}} > \tau_c \\ \mathbf{d} = \mathbf{0} & \text{si } \sqrt{\tau_{II}} \leq \tau_c \\ \text{tr } \mathbf{d} = 0 \end{array} \right. \quad (1.13)$$

où  $d_{II} = 1/2\text{tr}(\mathbf{d}^2)$  et  $\tau_{II} = 1/2\text{tr}(\boldsymbol{\tau}^2)$  sont les seconds invariants des tenseurs des taux de déformation  $\mathbf{d}$  et du déviateur du tenseur des contraintes de Cauchy  $\boldsymbol{\sigma}$ .  $n$  désigne l'indice d'écoulement.

Les courbes d'écoulement (c'est à dire la relation  $\tau, \dot{\gamma}$  dans une expérience de cisaillement simple) associées aux comportements décrits ci-dessus sont tracées sur la Fig. 1.2

### 1.2.3.3 Fluides à seuil thixotropes

De nombreux matériaux ont des propriétés rhéologiques (module élastique, viscosité apparente et seuil de contrainte) qui dépendent du temps et de l'histoire de l'écoulement : il s'agit de la thixotropie (les lecteurs intéressés en détail par ce phénomène sont invités à lire les travaux de Barnes [4]).

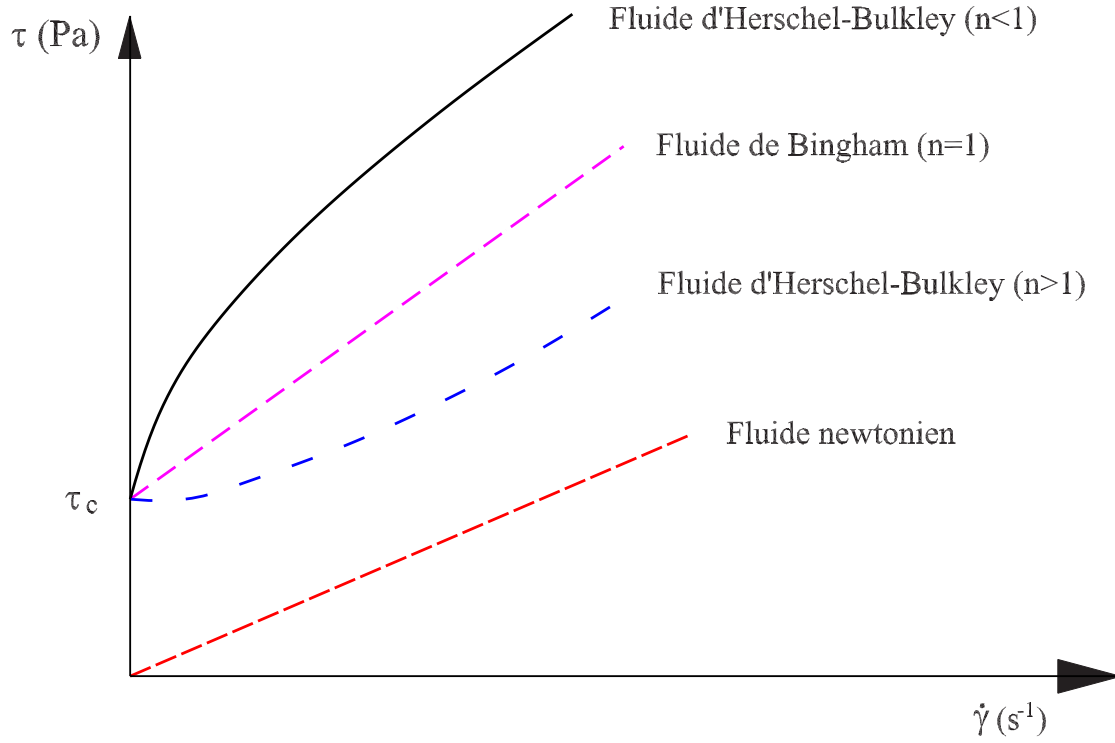


FIG. 1.2 – Relation entre le gradient de vitesse et la contrainte pour différents types de fluide.

Ce phénomène peut se retrouver dans une large gamme de matériaux, non seulement dans des processus industriels (béton (Assaad et al. [2]), pâte de ciment, peinture, certains dentifrices (Coussot [22])) mais aussi naturels (boues (Ancy et Jorrot [1])). On peut observer une augmentation du module élastique en fonction du temps de repos lorsque le matériau est soumis à une contrainte faible qui est inférieure au seuil de contrainte. Au contraire, lorsque le matériau est soumis à une contrainte supérieure à son seuil de contrainte, le matériau s'écoule et l'on observe une augmentation de la viscosité apparente. Dans un état initial solide, la viscosité diminue tandis que dans un état liquide, sa viscosité augmente et atteint un état stationnaire. Celui-ci est une compétition entre phénomènes de structuration au repos et de déstructuration dues à l'écoulement. Enfin, après un temps de repos, on observe une augmentation de la contrainte qui met le matériau en écoulement soit une augmentation du seuil de contrainte (Coussot [26]).

Parmi les définitions synthétiques de la thixotropie qui ont été proposées dans la littérature, on trouve une définition fondée sur les aspects macroscopiques de ce phénomène dans le dictionnaire du Groupe Français de Rhéologie [38] :

«Il y a thixotropie si :

1. Après un long repos, la vitesse de cisaillement (ou la contrainte) étant brusquement appliquée puis maintenue fixe, la viscosité apparente est fonction décroissante de la durée d'écoulement
2. Le corps retrouve son état initial après un repos assez long».

On trouve également des définitions de la thixotropie fondées sur ses aspects microscopiques : la thixotropie peut ainsi être définie comme une « déstructuration réversible de la structure particulaire sous cisaillement, la structure formée au repos étant souvent (mais non nécessairement) associée à un seuil d'écoulement » (Mujumdar et al. [60]). Cette description est complémentaire de celle du Groupe Français de Rhéologie puisque les évolutions temporelles de viscosité apparente sont effectivement la signature d'évolutions de la structure interne. Le schéma de principe de la thixotropie est représenté sur la Fig. 1.3

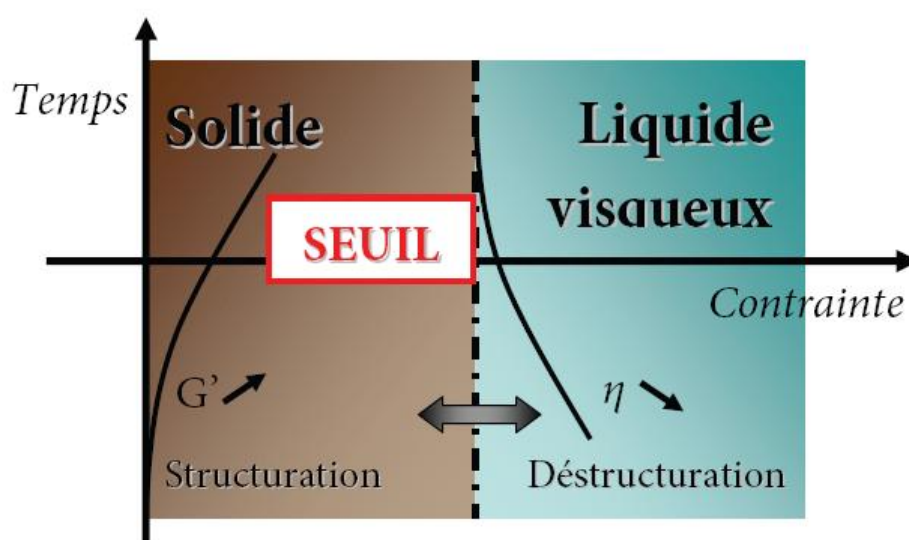


FIG. 1.3 – Schéma de principe du comportement d'un fluide à seuil thixotrope (Figure extraite de Mahaut [51])

Selon l'état au repos ou en écoulement, il y a deux possibilités de comportement du matériau thixotrope pour une contrainte appliquée donnée :

- Si la contrainte appliquée est plus petite que le seuil de contrainte, le matériau est au repos, son module élastique et sa contrainte seuil de mise en écoulement augmentent au cours du temps.
- Si la contrainte seuil est plus petite que la contrainte appliquée, pour un matériau solide, la viscosité diminue avant d’atteindre un état d’écoulement stationnaire tandis que pour un matériau fluide, la viscosité augmente et atteint un état stationnaire.

On reviendra au chapitre 4 et 5 sur la caractérisation et la modélisation du comportement des fluides thixotropes.

## 1.3 La rhéométrie

En pratique, l’identification complète d’une loi tensorielle est très difficile (Ovarlez et al. [67]), ce qui oblige à formuler des hypothèses sur le comportement du matériau étudié (isotropie, linéarité, nombre limité de variables d’état...). Dans le cadre défini par ces hypothèses, il convient alors d’identifier les coefficients ou relations entre variables d’état en procédant à des expériences les plus simples possibles. Cette mesure des caractéristiques des matériaux est l’objet de la rhéométrie. On cherche en général à imposer des chargements aux matériaux qui imposent des écoulements viscosimétriques (Coussot [23]).

De nombreuses techniques ont été développées et utilisées pour mesurer les propriétés rhéologiques d’un fluide. On présente ici les trois types de géométrie les plus utilisées dans la pratique.

### 1.3.1 Géométrie plan-plan

Cette géométrie est composée de deux disques coaxiaux en rotation relative (Fig. 1.4). En général, le disque supérieur est mobile alors que le disque inférieur est fixe. Le principal avantage de cette géométrie est que la mise en place requiert une faible quantité de fluide à mesurer et un nettoyage aisé. De plus, on peut régler l’entrefer (espace entre les deux disques) de cette géométrie à l’épaisseur souhaitée. Cela permet donc de tester des matériaux contenant des particules de tailles diverses.

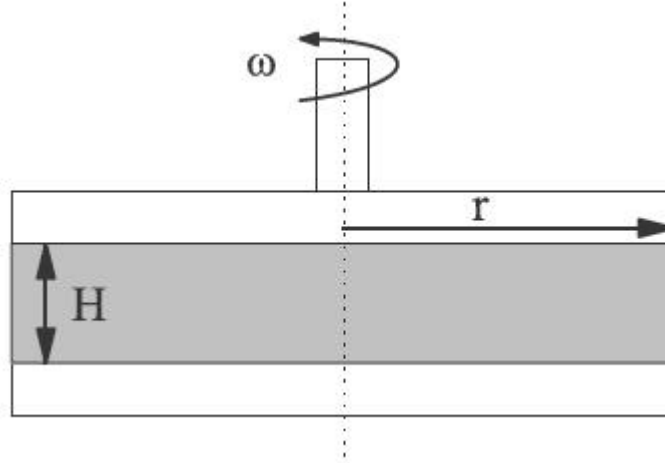


FIG. 1.4 – Géométrie plan-plan

Avec cette géométrie, on suppose que l'écoulement est quasistatique. Le champ de vitesse dans le fluide s'écrit :

$$\underline{V} = \omega \frac{r}{H} \underline{e}_\theta \quad (1.14)$$

On obtient alors le tenseur de taux de déformation :

$$\underline{d} = \frac{1}{2} \omega \frac{r}{H} (\underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_z + \underline{e}_z \otimes \underline{e}_\theta) = \frac{1}{2} \dot{\gamma}(r) (\underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_z + \underline{e}_z \otimes \underline{e}_\theta) \quad (1.15)$$

avec  $\dot{\gamma}(r) = \omega \frac{r}{H}$ .

On voit ici que l'inconvénient de cette géométrie est un gradient de vitesse très hétérogène (nul au centre et maximal à la périphérie) dans l'échantillon.

Le couple appliquée au disque mobile s'écrit (Coussot [23]) :

$$C = \int_0^R 2\pi r^2 \tau(\dot{\gamma}) dr = \frac{2\pi}{(\omega/H)^3} \int_0^{R\omega/H} \dot{\gamma}^2 \tau(\dot{\gamma}) d\dot{\gamma} \quad (1.16)$$

La borne supérieure de la seconde intégrale est le gradient de vitesse à la périphérie ( $\dot{\gamma}_R = \omega \frac{R}{H}$ ). En différentiant l'équation (1.16) par rapport à cette valeur, on obtient la contrainte de cisaillement au bord de la géométrie :

$$\tau(\dot{\gamma}_R) = \frac{3C}{2\pi R^3} + \frac{\dot{\gamma}_R}{2\pi R^3} \frac{dC}{d\dot{\gamma}_R} \quad (1.17)$$

où  $C$  désigne le couple,  $\omega$  la vitesse de rotation du disque mobile,  $R$  le rayon du



disque.

### 1.3.2 Géométrie cône-plan

Cette géométrie est constituée d'un plan et d'un cône tronqué coaxiaux en rotation relative (Fig. 1.5). Le plus souvent, le cône tronqué est mobile alors que le plan reste fixe. La vitesse locale d'un point du cône situé à une distance  $r$  de l'axe vaut  $\omega r$ . En première approximation, le gradient de vitesse local vaut (Coussot [23]) :

$$\dot{\gamma} = \frac{\omega r}{h(r)} = \frac{\omega}{\tan \alpha} \approx \frac{\omega}{\alpha} \quad (1.18)$$

avec  $h(r)$  désigne l'épaisseur local,  $\alpha$  est l'angle du cône. L'avantage principal de cette géométrie est que le gradient de vitesse reste presque homogène tant que l'angle du cône reste faible (inférieur quelques degré environ). De plus, cette géométrie permet de tester de petits volumes de matériau avec une mise en place et un nettoyage aisés. Par contre, son inconvénient majeur est de ne permettre qu'uniquement des expériences avec des matériaux contenant des particules très fines compte tenu du faible entrefer (espace entre le plan et la troncature du cône). En effet, la présence de particules grossières pouvait conduire à un blocage de l'écoulement à ce niveau. La surface libre, relativement grande par rapport au volume testé, favorise le phénomène d'évaporation.

Dans cette configuration, les effets d'inertie sont négligés et l'angle est supposé petit. Comme le gradient de vitesse, la contrainte est considéré comme homogène à l'intérieur du volume cisailé. On peut écrire directement la relation entre cette contrainte  $\tau$  et le couple total appliqué sur l'axe  $C$  (Coussot [23]) :

$$\tau = \frac{3C}{2\pi r^3} \quad (1.19)$$

où  $r$  est le rayon du cône. Dans ce cadre d'hypothèses, on constate qu'il est possible de directement identifier la loi de comportement à partir de la mesure de  $C$ .

### 1.3.3 Géométrie à cylindres coaxiaux

Cette géométrie dite géométrie de Couette, est constituée de deux cylindres coaxiaux en rotation l'un par rapport à l'autre (Fig. 1.6). Le matériau est cisailé dans l'intervalle compris entre les deux cylindres, ce qui rend sa mise en place un peu moins

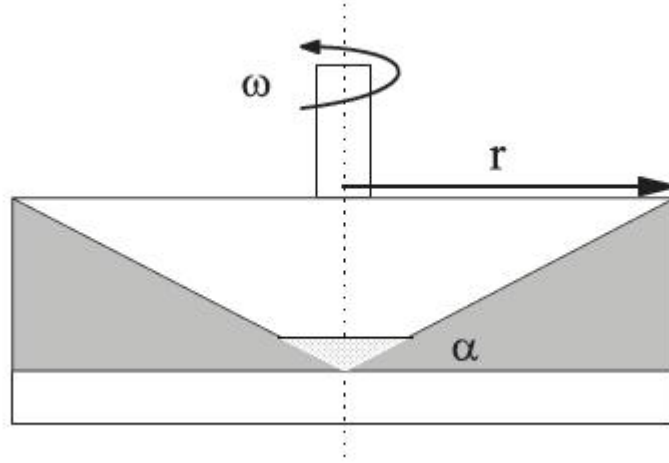


FIG. 1.5 – Géométrie cône-plan

aisée que pour les autres géométries, ainsi que son nettoyage. Son avantage principal réside dans la possibilité d'étudier des matériaux très fluides, ne pouvant pas rester au sein des géométries planes au cours des essais. Nous allons nous intéresser au cas newtonien en premier lieu puis au cas général.

### 1.3.3.1 L'écoulement Couette du fluide newtonien

En négligeant les effets dus à la surface libre et à la gravité, la vitesse du fluide s'écrit :

$$\underline{V} = v(r)\underline{e}_\theta \quad (1.20)$$

avec les conditions aux limites :  $v(R_i) = \Omega_i R_i$  et  $v(R_e) = 0$  où  $R_i$  et  $R_e$  sont respectivement les rayons intérieur et extérieur et  $\Omega_i$  la vitesse de rotation du cylindre intérieur. On obtient alors le tenseur de taux de déformation :

$$\underline{d} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} \right) (\underline{e}_r \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_r) \quad (1.21)$$

Le fluide étant de type newtonien, le tenseur de contrainte de Cauchy s'écrit :

$$\underline{\sigma} = 2\eta \underline{d} - p \underline{\delta} \quad (1.22)$$

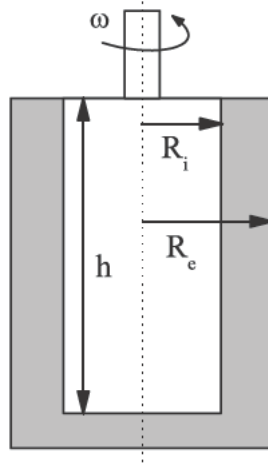


FIG. 1.6 – Géométrie Couette à cylindres coaxiaux

ou bien :

$$\boldsymbol{\sigma} = \eta \left( \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} \right) (\underline{e}_r \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_r) - p \boldsymbol{\delta} \quad (1.23)$$

En vérifiant la condition d'équilibre :

$$\text{div} \boldsymbol{\sigma} = -\frac{\partial p}{\partial r} \underline{e}_r + \eta \left( \frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v^2}{r} \right) \underline{e}_\theta = \underline{0} \quad (1.24)$$

On a donc que  $p$  est une constante et que  $\frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v^2}{r} = 0$  soit  $v(r) = \frac{A}{r} + Br$ .

En prenant en compte des conditions aux limites, on a :

$$\begin{cases} \frac{A}{R_i} + BR_i = \Omega_i R_i \\ \frac{A}{R_e} + BR_e = 0 \end{cases} \quad (1.25)$$

soit :

$$\begin{cases} A = \Omega_i \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \\ B = -\Omega_i \frac{R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \end{cases} \quad (1.26)$$

On a alors la solution :

$$\left\{ \begin{array}{l} v(r) = \Omega_i \frac{R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \left( \frac{R_e^2}{r} - r \right) \\ d_{r\theta} = -\Omega_i \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} \\ \tau_{r\theta} = -2\eta\Omega_i \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} \end{array} \right. \quad (1.27)$$

Par ailleurs, le couple appliqué par le cylindre intérieur sur le domaine fluide s'écrit :

$$\begin{aligned} C &= -2\pi R_i h \tau_{r\theta}(R_i) \times R_i \\ &= -2\pi R_i^2 h \times \left( -2\eta\Omega_i \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{R_i^2} \right) \end{aligned} \quad (1.28)$$

on a alors :

$$C = 4\pi\eta\Omega_i h \frac{R_e^2 R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \quad (1.29)$$

Par analogie à l'expérience de glissement simple, on pose :

$$\dot{\gamma}(r) = -2d_{r\theta} = 2\Omega_i \frac{R_e^2 R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r} \quad (1.30)$$

et

$$\tau(r) = \eta\dot{\gamma}(r) = -\tau_{r\theta} = 2\eta\Omega_i \frac{R_e^2 R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} \quad (1.31)$$

On remarque que l'on a :

$$\tau(r) = \frac{C}{2\pi r^2 h} \quad (1.32)$$

ce qui traduit l'équilibre en moment du domaine fluide.

### 1.3.3.2 L'écoulement Couette dans le cas général

On cherche la vitesse du fluide sous la forme :

$$\underline{V} = v(r)\underline{e}_\theta = r\omega(r)\underline{e}_\theta \quad \text{avec } \omega(R_i) = \Omega_i \quad \text{et } \omega(R_e) = 0 \quad (1.33)$$

et le champ de contraintes sous la forme :

$$\boldsymbol{\sigma} = -\tau(r) (\underline{e}_r \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_r) - p\boldsymbol{\delta} \quad \text{avec } \tau(r) = \frac{C}{2\pi r^2 h} \quad (1.34)$$

On vérifie que l'on a bien  $\text{div}\boldsymbol{\sigma} = \underline{0}$ . Le taux de déformation s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{d} &= \frac{1}{2}r\omega'(r) (\underline{e}_r \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_r) \quad \text{avec } \omega'(r) = \frac{d}{dr}\omega(r) \\ &= -\gamma(r) (\underline{e}_r \otimes \underline{e}_\theta + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_r) \quad \text{avec } \gamma(r) = -\frac{1}{2}r\omega'(r) \end{aligned} \quad (1.35)$$

Pour un matériau de viscosité apparente  $\eta(\gamma)$ , on a :

$$\tau(r) = \eta(\gamma)\gamma(r) \quad (1.36)$$

Donc si on impose  $C$ , et que l'on mesure  $v(r)$ , on peut identifier  $\eta(\gamma)$  grâce aux relations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \gamma(r) = -\frac{1}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} \right) = -\frac{1}{2}r\omega'(r) \\ \tau(r) = \frac{C}{2\pi r^2 h} \\ \eta(\gamma) = \frac{\tau(r)}{\gamma(r)} \end{array} \right. \quad (1.37)$$

L'inconvénient majeur de cette géométrie vient du fait que la distribution des contraintes dans l'entrefer est hétérogène et dépend de la taille de l'entrefer. La contrainte varie de manière proportionnelle à l'inverse du carré du rayon et donc plus l'entrefer est large plus la variation est importante.

Le cylindre intérieur peut être remplacé par un croisillon constitué de plusieurs pales. Dans ce cas, le rayon est pris comme étant celui du cylindre équivalent. Cette géométrie dite «vane» limite les effets de glissements du fait que les contacts du fluide aux parois sont réduits. Elle est souvent utilisée pour mesurer les propriétés de fluides à seuil (Barnes [5], Nguyen et Boger [62]) et plus particulièrement leur seuil de contrainte (Dzuy et Boger [33], Dzuy et Boger [34]).

### 1.3.4 Rhéologie oscillatoire

Dans le cas de très faibles déformations, la structure du matériau,  $\zeta$ , au repos n'est pas modifiée et sa réponse à cette sollicitation nous permet d'obtenir des informations sur les propriétés mécaniques de son état d'équilibre. Une des mesures les plus utilisées en rhéométrie est la mesure en oscillation. Cela consiste à imposer au matériau une déformation périodique autour de son état d'équilibre, par exemple une déformation sinusoïdale de la forme :

$$\gamma(t) = \gamma_0 \cos \omega t \quad (1.38)$$

où  $\gamma_0$  est suffisamment faible pour laisser le matériau dans son état d'équilibre. Le but de la rhéologie oscillatoire est donc de fixer une valeur  $\gamma_0$  telle que  $\zeta$  ne soit pratiquement pas modifiée. La contrainte correspondante oscille à la même fréquence et est proportionnelle à  $\gamma_0$  :

$$\sigma(t) = \sigma_0 \cos(\omega t + \delta(\omega)) \quad (1.39)$$

avec  $\delta(\omega)$  le déphasage entre la déformation et la réponse en contrainte. Cette dernière peut être écrite en fonction d'un terme en phase et d'un terme en quadrature de phase en fonction de la sollicitation :

$$\sigma(t) = \sigma_0 \cos(\omega t) \cos(\delta(\omega)) - \sigma_0 \sin(\omega t) \sin(\delta(\omega)) \quad (1.40)$$

Le module élastique  $G'(\omega)$  et le module visqueux  $G''(\omega)$  sont alors définis par les relations suivantes :

$$G'(\omega) = \frac{\sigma_0}{\gamma_0} \cos(\delta(\omega)) \quad (1.41)$$

$$G''(\omega) = \frac{\sigma_0}{\gamma_0} \sin(\delta(\omega)) \quad (1.42)$$

Pour un solide élastique de module élastique de cisaillement  $G_0$ , on a donc :  $G'(\omega) = G_0$  et  $G''(\omega) = 0$  tandis que pour un fluide newtonien de viscosité  $\eta$ ,  $G'(\omega) = 0$  et  $G''(\omega) = \eta\omega$ . Dans le cas général, les valeurs des deux modules dépendent de la fréquence de la sollicitation imposée.

## 1.4 Vers les propriétés rhéologiques macroscopiques d'une suspension

Une suspension est définie comme un système hétérogène constitué de particules solides suspendues dans un fluide porteur (newtonien ou non). Le comportement des suspensions a été étudié par de nombreux chercheurs aussi bien d'un point de vue théorique que d'un point de vue expérimental. Une source importante de difficulté pour caractériser ou modéliser le comportement des suspensions provient du fait que le matériau est multiéchelle et contient plusieurs constituants qui interagissent. A notre connaissance, il semble qu'il n'existe pas de méthodologie systématique bien établie permettant d'élaborer un matériau possédant des caractéristiques particulières à partir de composants dont les propriétés sont connues alors qu'il s'agit d'un problème rencontré dans de nombreux processus industriels. Le travail présenté dans cette thèse vise à caractériser l'influence de l'ajout particules non colloïdale sur les propriétés rhéologiques (viscosité et valeur du seuil de contrainte notamment) d'une suspension à l'échelle macroscopique dans le cadre d'une approche micromécanique et d'une approche expérimentale. Avant de présenter en détail les travaux que nous avons menés, nous rappelons dans les paragraphes qui suivent quelques résultats de la littérature.

### 1.4.1 Suspensions newtonniennes

#### 1.4.1.1 Suspension diluée

Pour une suspension dont la fraction volumique de particules  $\phi$  est faible, Einstein [35] a établi une relation fameuse reliant la viscosité relative de la suspension (la relation d'Einstein pour les suspensions dont la fraction volumique en particules sphériques reste inférieure à 3% environ du volume total) à la fraction volumique occupée par les particules. Cette relation s'écrit :

$$\eta^{re} = \frac{\eta^{hom}}{\eta} = 1 + 2.5 \phi \quad (1.43)$$

où  $\eta^{re}$  désigne la viscosité relative,  $\eta^{hom}$  la viscosité de la suspension et  $\eta$  la viscosité du fluide suspendant. D'un point de vu pratique, on considère que dans cette équation  $\phi$  désigne la fraction volumique en particules. La formule (1.43) a été obtenue par Einstein en calculant l'énergie dissipée dans l'écoulement de la suspension à

l'échelle macroscopique (c'est à dire en considérant la suspension comme un fluide homogène) et à l'échelle des particules puis écrivant l'égalité de ces deux expressions.

Soixante six ans plus tard, Batchelor et Green [6] ont étendu la relation (1.43) en ajoutant un terme d'ordre deux en  $\phi$  en prenant en compte les interactions hydrodynamiques entre paires de particules. La principale difficulté dans cette approche est de prendre en compte le couplage entre la distribution des centres des particules au sein du matériau et l'écoulement imposé à la suspension. En fait, Batchelor et Green n'ont obtenu la solution exacte du problème que dans le cas où le matériau est soumis à une déformation pure. Si le mouvement brownien est considéré, ce terme égale à  $6.2 \phi^2$ . Pour un écoulement élongationnel du mouvement non-brownien, ce terme est égale à  $7.6 \phi^2$ . Dans ce cas, la suspension est toujours isotrope et la viscosité macroscopique relative est donnée par :

$$\eta^{re} = 1 + 2.5 \phi + 7.6 \phi^2 \quad (1.44)$$

Dans les autres cas, Batchelor et Green n'ont pas trouvé la solution exacte permettant de prédire la structure de la suspension en fonction de la sollicitation appliquée. Dans le cas où la microstructure de la suspension reste isotrope, ils proposent d'utiliser la relation obtenue par Hashin pour un matériau composite élastique renforcé par des inclusions rigides :

$$\eta^{re} = 1 + 2.5 \phi + 5.2 \phi^2 \quad (1.45)$$

Ces trois relations ci-dessus sont valables pour les suspensions diluées avec une faible valeur de la concentration en particules.

#### 1.4.1.2 Viscosité d'une suspension concentrée

L'estimation de la viscosité d'une suspension pour une concentration supérieure à quelques pour cent pose beaucoup de problèmes parce que les interactions hydrodynamiques se développent effectivement : les perturbations du champs de vitesses induites par la présence d'une particule ne sont plus négligeables aux environs des particules voisines (Coussot et Ancey [23]). De nombreuses approches, théoriques, semi empiriques ou empiriques ont été proposées pour estimer la viscosité d'une suspension concentrée. Une idée simple a été discutée par Phan-Thien et Pham [71]. Ils ont considéré une suspension de fraction volumique  $\phi$  et dont la viscosité du fluide



porteur est égal à  $\eta$ . L'ajout une petite quantité de particule  $d\phi$  au fluide suspens-  
 dant occupant la fraction volumique  $1 - \phi$  au sein de la suspension augmente la  
 fraction volumique en particules de  $d\phi/(1 - \phi)$ . En utilisant la viscosité  $\eta$  comme la  
 viscosité moyenne du fluide et en utilisant la relation d'Einstein (1.43), l'incrément  
 en viscosité  $d\eta$  est donné par :

$$d\eta = \frac{5}{2} \frac{d\phi}{(1 - \phi)} \eta \quad (1.46)$$

L'intégration de cette relation nous donne l'estimation de la viscosité macroscopique  
 relative de la suspension suivante :

$$\eta^{re} = (1 - \phi)^{-5/2} \quad (1.47)$$

Le développement limite au premier ordre de la relation (1.47) pour les faibles valeurs  
 de  $\phi$  redonne la relation d'Einstein (1.43). Cependant, cette estimation n'est valable  
 que si à chaque incrément, la taille des particules ajoutées est beaucoup plus grande  
 (au moins 10 fois environ) que celle des particules déjà présentées dans la suspension.  
 Cette hypothèse forte réduit considérablement l'intérêt pratique de la relation (1.47).  
 On considère (Vu, Ovarlez et Chateau [88]) que pour les fortes valeurs de  $\phi$ , l'équa-  
 tion (1.47) sous estime la valeur réelle de la viscosité de la suspension.

Ball et Richmond [3] ont utilisé un argument plus raffiné en considérant que l'incrément  
 $d\phi$  de particules est ajouté à moins de  $1 - \phi$  en volume de fluide porteur, à  
 cause d'un « effet de Foule ». Ils ont remplacé  $1 - \phi$  par  $1 - \phi/\phi_m$  dans (1.47) et  
 obtenue l'estimation de la viscosité suivante :

$$\eta^{re} = (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m} \quad (1.48)$$

qui n'est autre que la relation de Krieger-Dougherty [47]. Dans cette relation,  $\phi_m$   
 représente la valeur de la fraction volumique maximale, c'est-à-dire le volume maxi-  
 mal de particules par unité de volume total que l'on peut inclure dans la suspension.  
 La valeur  $\phi_m$  correspond au seuil de percolation pour laquelle la viscosité de la sus-  
 pension devient infinie. Cette valeur dépend de la forme, de la nature de la surface  
 des particules, de la distribution de taille ainsi que l'arrangement de particules dans  
 l'espace. La relation de Krieger-Dougherty fonctionne bien pour les suspensions dont  
 le fluide suspensé est newtonien.

D'après une étude de Metzner [55], une de bonne estimation analytique de la viscosité a été proposée par Frankel et Acrivos [39] :

$$\eta^{re} = \frac{9(\phi/\phi_m)^{1/3}}{8(1 - (\phi/\phi_m)^{1/3})} \quad (1.49)$$

où  $\phi_m$  est la fraction volumique maximale ( $\sim 0.62 - 0.64$ ) pour des sphères monodisperse. Frankel et Acrivos ont reconnu que pour une suspension dense, les forces lubrification entre particules voisines sont dominantes et que la distance entre les particules sphériques est un paramètre important. Cependant, cette équation n'est pas compatible avec la relation d'Einstein quand  $\phi \rightarrow 0$  et Metzner [55] a recommandé une relation empirique :

$$\eta^{re} = (1 - \phi/A)^{-2} \quad (1.50)$$

où  $A$  est trouvé empiriquement. Coussot [23] a proposé de remplacer l'indice  $-2$  dans l'équation (1.50) par un paramètre  $\alpha$  :  $\eta^{re} = (1 - \phi/A)^{-\alpha}$ . En général  $\alpha = 2$ , ce qui permet une bonne représentation des résultats expérimentaux (Coussot et Ancy [23]). Dans ce cas on peut retrouver à partir de cette relation la formule d'Einstein lorsque  $\phi \rightarrow 0$  à condition de prendre  $A = 0.8$ . Cependant, la valeur de  $A$  ci-dessus est supérieure à celle de  $\phi_m$  correspondant à un empilement de sphères monodisperse. Si on veut avoir un bon accord entre les deux théories pour les suspensions diluées, il faut utiliser la proposition de Krieger - Dougherty et prendre  $A = \phi_m$  et  $\alpha = 2.5 \phi_m$ . En bref :

- Jusqu'à  $\phi = 0.02$ , la formule d'Einstein (1.43) est adéquate.
- Jusqu'à  $\phi = 0.04$ , la formule de Batchelor (1.45) est adéquate.
- Pour  $\phi \geq 0.1$  jusqu'à  $\phi = 0.6$ , les estimations de Krieger-Dougherty (1.48) ou de Frankel et Acrivos (1.49) peuvent être utilisées pour les suspensions monodisperses.

Les relations présentées ci-dessus sont tracées sur la Fig. 1.7.

Le modèle de Farris [37] permet d'estimer la viscosité d'une suspension de particules multimodales sans interaction à partir uniquement de la viscosité des suspensions de particules monomodales. Le principe du modèle est que lors de l'ajout de grosses particules dans une suspension de particules beaucoup plus fines, cette suspension peut être considérée comme un fluide. La condition de noninteraction utilisée ici n'est vérifiée que si le rapport de diamètre entre deux classes consécutives est au

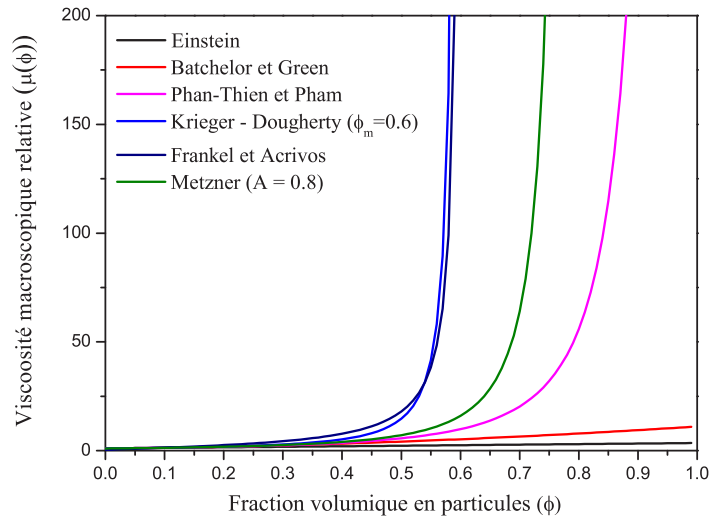


FIG. 1.7 – Estimation de la viscosité macroscopique relative en fonction de la fraction volumique en particules pour les suspensions newtoniennes.

moins de 10. Cette approche prévoit que pour une concentration volumique en particules donnée, la viscosité d'une suspension multimodale est plus faible que celle d'une suspension monomodale. Cette propriété est souvent utilisée en pratique pour réduire la viscosité des suspensions très concentrées (Mewis [57]).

Les études citées ci-dessus cherchent à prédire la viscosité macroscopique relative d'une suspension de particules dans un fluide newtonien. Ces modèles présentent un accord plus ou moins satisfaisant avec les données expérimentales pour de nombreuses suspensions newtoniennes. Cependant, ces modèles ne peuvent pas être utilisés pour des suspensions de particules dans un fluide dont les propriétés rhéologiques sont non newtoniennes comme les bétons frais, les pâtes alimentaires, les laves, les boues etc. Cette limitation est d'autant plus gênante que de nombreuses suspensions industrielles sont élaborées en mélangeant des particules à des fluides à seuil, rhéofluidifiants, thixotropes pouvant exprimer des phénomènes de rhéoépaississement pour des taux de cisaillement élevés (Coussot et Ancey [23]).

### 1.4.2 Suspensions de particules dans un fluide à seuil

Contrairement aux suspensions newtoniennes, les suspensions de particules dans un fluide à seuil ont été l'objet de peu d'études. Le fluide à seuil est souvent supposé obéir à une loi de comportement du type Bingham ou Hershel-Bulkley. Ces modèles distinguent deux paramètres rhéologiques principaux : la contrainte seuil de mise en écoulement  $\tau_c$  et la consistance  $\eta$ . On présente dans la suite quelques travaux expérimentaux, théoriques et numériques consacrés à l'étude du comportement et des caractéristiques de ces milieux.

#### 1.4.2.1 Approche expérimentale

Quelques études expérimentales spécifiques ont été consacrées aux matériaux cimentaires (Geiker *et al.* [40]), aux boues (Ancey et Jorrot [1]) ou aux mousses (Cohen-Addad *et al.* [21]). Ancey and Jorrot [1] ont étudié le comportement de suspensions de particules non-colloïdales dans une dispersion d'argile. Ils ont mesuré la contrainte seuil à l'aide d'un essai d'affaissement au cône d'Abrams et observé différents comportements selon la nature des billes utilisée. Geiker *et al.* [40] ont étudié l'effet de l'ajout particules à des ciments autoplaçant à l'état frais. Ils ont mesuré le seuil de contrainte et la viscosité du matériau à l'aide d'un rhéomètre Couette à cylindres coaxiaux. Pour mesurer la contrainte seuil, ils ont interpolé la courbe d'écoulement par une loi de type Hershel-Bulkley. Leurs résultats sont complètement différents de ceux obtenus par Ancey et Jorrot.

Récemment, Mahaut et al. [52] ont proposé une approche plus générale en formulant des systèmes modèles. Ils ont étudié le comportement de suspensions de particules non-colloïdale<sup>2</sup> dans des fluides à seuil modèles de natures différentes (émulsion, carbopol et bentonite) (Mahaut et al. [52]) ou dans une pâte de ciment (Mahaut et al. [53]). Leurs études ont porté sur le comportement de suspensions de particules non-colloïdales monodisperses isotropes. Un des objectifs de cette thèse est de généraliser cette approche pour étudier le comportement de suspensions de particules non-colloïdales bidisperses dans un fluide à seuil.

---

<sup>2</sup>Particules non-colloïdales : "des particules qui ne sont pas affectées par les interactions colloïdales et dont la taille est supérieure à une dizaine de microns"

### 1.4.2.2 Quelques modèles théoriques

On présente ici quelques modèles rhéologiques théoriques dédiés aux suspensions de particules dans un fluide non newtonien. Le modèle de Nielsen [63] est décrit dans l'article de Geiker *et al.* [40]. Dans cette approche, la suspension est considérée comme un mélange de particules rigides ellipsoïdales suspendues dans un fluide à seuil de Bingham. Dans le cas d'une suspension de particules monodisperses sphériques, la contrainte seuil macroscopique relative et la consistance macroscopique relative sont données par :

$$\tau_c(\phi) = 1 + \frac{3}{2}\phi - \frac{3}{2} \frac{\phi^2}{\phi_m - \phi} \quad (1.51)$$

et

$$\eta(\phi) = \frac{1 + \frac{3}{2}\phi - \frac{3}{2} \frac{\phi^2}{\phi_m - \phi}}{1 - \phi} \quad (1.52)$$

Le modèle de Nielsen est capable de prédire les caractéristiques rhéologiques d'une suspension de particules ellipsoïdales dans un fluide à seuil de Bingham avec seulement cinq paramètres y compris trois paramètres pour les particules (la fraction volumique maximale, un ratio de la forme  $A$  et un coefficient d'interaction  $M$ ) et deux paramètres intrinsèques au fluide porteur ( $\tau_c$  et  $\eta$ ). Ce modèle est une généralisation d'un modèle composite initialement développé pour les suspensions de particules dans un fluide de Maxwell. Par contre, cette généralisation repose sur des règles qui ne sont pas rigoureusement justifiées. A notre connaissance, ce modèle n'a été utilisé que pour décrire les données de Geiker *et al.* [40].

En 1976, Hobbs [46] a proposé une approche théorique en considérant le béton comme un matériau biphasique constitué d'une pâte de ciment et de granulats. Les lois de comportement de la pâte et du béton sont des lois de comportement de Bingham. D'après Hobbs, le seuil de contrainte relative et la viscosité relative du béton sont données par :

$$\tau_c(\phi) = 1 + \frac{1.5\phi_m\phi + \phi^2}{\phi_m - \phi} \quad (1.53)$$

et

$$\eta(\phi) = 1 + \frac{2.5\phi_m\phi}{(\phi_m - \phi)(1 - \phi)} \quad (1.54)$$

Ce modèle se base sur la loi des mélanges avec des hypothèses simplifiées. Il n'utilise seulement que trois paramètres principaux (le seuil de contrainte  $\tau_{cp}$ , la viscosité  $\eta_p$  de la pâte ainsi que la fraction volumique maximale  $\phi_m$  en particules) pour prédire la contrainte seuil et la viscosité du béton.

Les deux modèles non newtoniens décrits ci-dessus visent à prédire la loi de comportement rhéologique macroscopique du béton à partir des propriétés de ses constituants. Cependant, ces modèles se basent sur des règles heuristiques ou sur des lois et hypothèses simplifiées. Le modèle de Nielsen prédit des valeurs du seuil de contrainte beaucoup plus grandes par rapport au modèle de Hobbs. De plus, ces deux modèles n'appliquent pas à des suspensions dont le fluide suspendant possède des propriétés rhéologiques plus complexes du type Hershel-Bulkley, thixotropie, etc.

### 1.4.2.3 Modèles numériques

A côté des approches expérimentales et théoriques, de nombreuses études ont cherché à modéliser le comportement d'une suspension non newtonienne numériquement. L'approche numérique est très prometteuse parce qu'elle permet d'accéder à la localisation autour des particules dans la suspension et de prendre en compte des interactions entre particules ou l'anisotropie tandis que l'approche analytique ne peut pas.

A ce jour, la résolution du problème numérique pour des particules non colloïdales suspendues dans un fluide newtonien peut être menée par simulation numérique (Brady [15]). Cependant, cette méthode ne peut pas être étendue au cas du fluide porteur non newtonien car elle se base sur une estimation de la force hydrodynamique exercée sur chaque particule en fonction du taux de déformation macroscopique et de la vitesse relative de la particule par rapport au fluide valable uniquement pour un fluide de Stokes (Bossis et Brady [13], Brady et Bossis [16]). Ces relations permettent de résoudre l'équation continue de Stokes dans le fluide pour simuler le comportement de la suspension. Par contre, il n'existe pas une telle équation pour les particules suspendues dans un fluide à seuil.

Très peu d'études ont cherché à résoudre le problème d'écoulement de particules dans un fluide à seuil en utilisant la méthode d'éléments finis. Cette tâche est très coûteuse en terme du temps de calcul et la résolution du problème en trois dimensions

pour un nombre réaliste de particules paraît encore hors de portée des ordinateurs disponibles (Roquet et Saramito [74], Yu et Wachs [91]).

## 1.5 Approche micromécanique

Face aux problèmes rencontrés avec les modèles numériques, la méthode micromécanique est considérée comme un outil prometteur pour estimer les caractéristiques globales des matériaux hétérogènes. Classiquement, les méthodes micromécaniques (dites aussi méthodes d'homogénéisation) ont été mises en œuvre par voie analytique en poursuivant deux objectifs complémentaires : identifier la forme de la loi de comportement macroscopique ainsi que son domaine de validité et calculer la valeur (ou une estimation) des coefficients de la loi macroscopique en partant, dans les deux cas, d'une modélisation du comportement des matériaux à l'échelle microscopique (Bornert [10], Zaoui [93]).

Le problème d'homogénéisation d'une suspension de particules dans un fluide est absolument similaire à celui abordé dans le domaine du comportement des matériaux solides (Zaoui [93]). Cette similitude entre ces deux problèmes a été reconnu par Batchelor et Green [7] dans le cas où le comportement du fluide porteur est linéaire. En fait, cette similitude est valable non seulement dans le cas où le comportement du matériau est linéaire mais aussi pour le cas du comportement non-linéaire. La Fig. (1.8) présente l'équivalence entre le comportement d'un matériau solide et celui d'un matériau liquide. Grâce aux nouvelles approches en micromécanique des matériaux hétérogènes à comportement non-linéaire développées au cours de ces dernières années, on dispose pour ces matériaux d'estimations ainsi que d'encadrements énergétiques (Ponte Castaneda [72], Suquet [82]).

L'identité mathématique entre les deux problèmes nous permet d'utiliser les résultats disponibles pour les matériaux solides hétérogènes à comportement linéaire pour traiter le comportement d'une suspension newtonienne ou ceux concernant les matériaux à comportement non-linéaire pour étudier le comportement d'une suspension non-newtonienne.

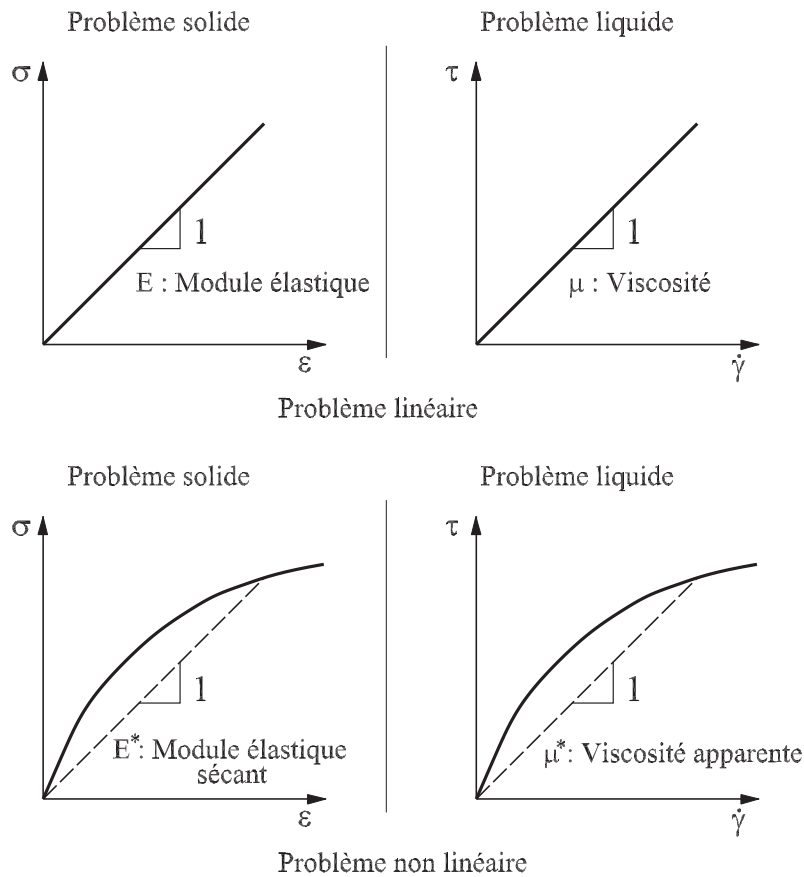


FIG. 1.8 – Similitude entre le problème solide et le problème liquide

### 1.5.1 Méthodologie de l'homogénéisation

Le volume élémentaire représentatif (VER) est défini par l'assemblage de nombreux éléments homogènes de petites tailles possédant les caractéristiques mécaniques et géométriques du matériau hétérogène. La taille  $l$  du VER doit être suffisamment petite par rapport à la dimension caractéristique  $L$  de la structure macroscopique étudiée pour que l'on puisse traiter la structure comme un milieu continu homogène. Par contre, la taille du VER  $l$  doit être beaucoup plus grande que  $d$ , la taille caractéristique des hétérogénéités, pour que l'on puisse caractériser le comportement du VER par une loi de comportement macroscopique homogène. Lorsque la séparation d'échelle est possible, le milieu hétérogène réel peut être remplacé par un «Milieu homogène effectif». Pour pouvoir arriver à atteindre les objectifs de l'approche d'homogénéisation, il est nécessaire de procéder à trois séries d'opérations (Zaoui [92]) :



- **L'étape de représentation du VER** : Cette étape consiste dans la description du VER à l'échelle microscopique. Pour cela, on précise d'abord les différentes phases homogènes constitutives du matériau. Ensuite, il faudra définir la géométrie et l'échelle interne du VER et celles de ses éléments hétérogènes ainsi que leurs distribution spatiale dans le milieu. Enfin, à ce stade, il faut décrire la loi de comportement ainsi que les propriétés caractéristiques mécaniques de chaque élément constitutif du VER.
- **L'étape de localisation** : Une fois le VER défini, l'étape de localisation consiste dans la formulation du problème dont il fait l'objet. Il nous faut alors établir les équations du problème à résoudre. On obtient une formulation différente selon le choix de la modélisation du VER. Cela permet d'obtenir les champs locaux de contrainte et de déformation. Cette étape nous permet aussi d'établir le lien entre comportement à l'échelle microscopique et caractérisation du comportement à l'échelle macroscopique.
- **L'étape d'homogénéisation** : L'étape d'homogénéisation consiste en l'expression du comportement effectif équivalent et son estimation. L'utilisation du lemme de Hill que l'on va présenter dans le Chapitre 3 permet d'établir l'expression énergétique des caractéristiques effectives. Cette étape nous permet de déterminer la loi macroscopique à partir des moyennes des solutions locales calculées dans l'étape de localisation.

### 1.5.2 Méthode d'estimation

Les méthodes d'estimation visent à obtenir une estimation des caractéristiques globales du matériau hétérogène considéré. Différentes méthodes plus ou moins élaborées ont été proposées dans littérature pour répondre à cette question. Historiquement, les premières estimations proposées correspondaient aux situations diluées, applicables uniquement dans les cas où les fractions volumiques occupées par les hétérogénéités sont suffisamment faibles pour que l'on puisse négliger les interactions entre ces hétérogénéités (estimation d'Einstein dans le cas d'une suspension newtonienne, estimation d'Eshelby dans le cas d'un composite élastique).

Dans le but de rendre compte de l'existence d'interaction entre phases, différentes méthodes ont été proposées : on citera en particulier les méthodes en milieu effectif, conduisant aux estimations autocohérentes ainsi que les méthodes en champ effectif conduisant aux estimations de Mori-Tanaka ou de Maxwell. Il est à noter qu'une

interprétation de ces deux grandes classes de méthodes d'estimation à partir de la formulation variationnelle du problème de localisation a été donnée par Bornert [10] dans le cas d'un comportement linéaire du matériau. Dans ce cadre, il a également été proposé de nouvelles estimations, comme les estimations par motifs morphologiques représentatifs, qui permettent de mieux rendre compte des propriétés morphologiques du VER. Il est également possible de proposer des estimations des caractéristiques globales d'un matériau hétérogène quand ses constituants obéissent à des lois de comportement non linéaires (Suquet [82]). On reviendra au chapitre 3 sur la modélisation micromécanique du comportement des matériaux élastiques hétérogènes et sur l'application de cette approche pour le comportement rhéologique des suspensions de particules dans un fluide.

## 1.6 Conclusion

Dans ce chapitre d'introduction, on a tout d'abord présenté quelques éléments principaux de la rhéologie concernant les différents types de comportement d'un fluide (newtonien ou à seuil) ainsi que de la rhéométrie qui seront utilisés pour mesurer les propriétés rhéologiques d'un matériau. On a ensuite exposé de façon sommaire quelques modèles typiques qui permettent de prédire la viscosité globale d'une suspension de particules dans un fluide newtonien.

On a présenté les différentes approches (expérimentale, théorique et numérique) visant à étudier le comportement macroscopique d'une suspension de particules dans un fluide à seuil. L'approche expérimentale proposée par Mahaut et al. [52] a été retenue pour étudier le comportement d'une suspension de particules non-colloïdale bidisperses dans un fluide à seuil dans cette thèse. Enfin, on a présenté les principales caractéristiques des méthodes d'homogénéisation permettant à obtenir une description homogène équivalente du comportement d'un matériau hétérogène.

Dans le chapitre suivant, on met en oeuvre une méthode d'expérimentale pour étudier l'influence de l'ajout des particules non-colloïdales bidisperses sur les propriétés rhéologiques d'un fluide à seuil.



## CHAPITRE 2

---

### Suspension bidisperse de particules non colloïdales dans un fluide à seuil : Approche expérimentale

---

#### 2.1 Introduction

De nombreux matériaux industriels tels que les bétons, les boues de forage, les produits agroalimentaires... et matériaux naturels tels que les boues, les laves... sont des suspensions de particules polydisperse suspendues dans un fluide non newtonien. La compréhension et la modélisation du comportement de ces matériaux constituent donc des enjeux importants aussi bien en science des matériaux que pour l'élaboration de matériaux industriels. Il est aussi bien connu que la granulométrie des granulats est l'un des facteurs conditionnant la résistance d'un béton ; Par ailleurs, les propriétés rhéologiques du béton frais dépendent également de la distribution granulométrique des granulats (Neville [61]). Par conséquent, de nombreux travaux se sont attachés à prédire l'influence de la distribution granulométrique sur les propriétés mécaniques macroscopiques d'un béton dans son état durci ainsi que dans son état frais, et à élaborer des méthodes de mélange pertinentes (de Larrard [28]). Comme les propriétés rhéologiques d'une suspension (viscosité, contrainte seuil...) sont des fonctions croissantes de la fraction volumique des particules rigides, il est nécessaire de réduire cet effet afin de concevoir des formulations de béton contenant une quantité maximale de particules rigides qui puissent être transportées, placées et mises en place facilement.

Le comportement des suspensions non newtoniennes polydisperses, en particulier bidisperses, a attiré l'intérêt des nombreux rhéologues. Plusieurs travaux, que ce soit théoriques ou expérimentaux, ont été consacrés à ce sujet dans les dernières décennies. Différentes relations théoriques visant à prédire la viscosité d'une suspension polydisperse en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$  et de la distribution de taille des particules ont été proposées dans la littérature (Farris [37] ; Chong et al. [19] ; Storm et al. [79] ; Gondrer et Petit [41]). Dans ces trois derniers travaux, l'influence de la distribution granulométrique est prise en compte au travers du concept de *fraction volumique maximale*, même si ce concept n'est pas toujours rigoureusement défini. Il semble naturel de définir la fraction volumique maximale d'une suspension comme la fraction volumique pour laquelle ses propriétés rhéologiques divergent. Néanmoins, la détermination de la valeur de la fraction volumique solide à laquelle les propriétés rhéologiques d'une suspension divergent, et son lien avec les modèles d'empilement sec, pose problème. Dans le cas de sphères monodisperses, il semble être égal à 0.57 pour une distribution isotrope de particules (Mahaut et al. [52]) et à 0.605 pour une distribution anisotrope (Ovarlez et al. [68]) tandis que la densité d'empilement aléatoire de particules sphériques sec est égal à 0.64 (Dong et al [30]).

Farris [37] a étudié la viscosité relative d'une suspension bimodale dans le cadre d'une approche théorique rigoureuse, valable uniquement si la taille des grosses particules est beaucoup plus grande que celle des petites particules (c'est à dire quand  $\lambda$ , le rapport de taille entre grosse particule et petite particule, est supérieur à 10). Lorsque cette condition est satisfaite, on peut considérer que les grosses particules interagissent avec la suspension newtonienne de petites particules, et que, la viscosité relative de la suspension bimodale est égale au produit de la viscosité relative de chaque suspension monodisperse. L'approche de Farris peut être généralisée aux suspensions newtoniennes polydisperses ou aux suspensions dont le fluide suspendant est non-newtonien à condition que l'on dispose d'estimations globales des propriétés rhéologiques de la suspension monodisperse. Stovall et al. [80] ont généralisé l'approche de Farris en prenant en compte des interactions entre les particules de tailles différentes en utilisant le modèle d'empilement sec de Stoval et al. [81] pour traiter les problèmes où la séparation d'échelle de taille entre particules n'est pas possible. Néanmoins, ce travail semble ne pas reposer sur des bases très rigoureuses puisque le raisonnement de Farris est utilisé par ces auteurs dans une situation où la séparation d'échelle de taille des particules n'est pas possible.

Plus tard, Phan-Thien et Pham [71] ont développé un modèle multiphasique pour les suspensions polydisperses. Leur idée consiste à partir du matériau suspendant homogène (un fluide newtonien ou un matériau solide de Hooke) et à introduire des fractions volumiques infinitésimales de particules dans le cadre d'un processus itératif (schéma différentiel). La première étape correspond alors à l'approche d'Einstein des propriétés macroscopiques d'une suspension diluée. Les étapes suivantes consistent à éliminer une faible fraction volumique du milieu effectif suspendant en le remplaçant par la même fraction volumique de particules. Bien entendu, un tel processus n'est rigoureux que si la séparation d'échelle de taille des particules est possible à chaque étape. En fait, ce modèle n'est valable que pour les suspensions à faible fraction volumique de solide et n'est donc pas applicable aux suspensions concentrées. En effet, Phan-Thien et Pham [71] ont constaté que les valeurs rhéologiques estimées par ce modèle sont beaucoup plus faibles que celles mesurées expérimentalement pour des suspensions polydisperses concentrées.

A côté des travaux théoriques, des études expérimentales ont également été effectuées. Shapiro et Probstein [76]; Probstein et al. [73] et Chang et Powell [17] ont utilisé divers types de viscosimètres afin de mesurer la viscosité de suspensions bidisperses. Les mêmes tendances générales sont observées dans ces travaux. Pour une valeur de la fraction volumique solide donnée, la viscosité d'une suspension bidisperse est inférieure à celle d'une suspension monodisperse et la viscosité est une fonction décroissante de la fraction volumique maximale associée à la distribution de taille de particules. Il est intéressant de noter que Chang et Powell [17] ont également montré que la viscosité relative  $\eta(\phi)/\eta(0)$  de ces suspensions est essentiellement une fonction de  $\phi/\phi_m$  seulement, où  $\phi$  est la fraction volumique de particules et  $\phi_m$  est la fraction volumique maximale d'empilement du mélange de particules. Gondret et Petit [41] ont mesuré la viscosité à fréquence finie de suspensions bidisperses. Ils ont également observé les influences de la distribution granulométrique sur la viscosité dynamique de suspensions bidisperses, et qu'aux fortes valeurs de la fraction volumique maximale d'empilement correspondaient de faibles valeurs de la faible viscosité dynamique.

A partir de ces études, il apparaît clairement que la viscosité d'une suspension polydisperse concentrée est étroitement liée à la fraction volumique maximale d'empilement des particules. Par conséquent, la viscosité d'une suspension newtonienne

peut être contrôlée par l'optimisation de la distribution de taille des particules (Servais et al. [75]).

Toutes ces études ont porté sur l'influence de la polydispersité sur la viscosité des suspensions newtoniennes alors que les suspensions polydisperses non newtoniennes ont été très peu étudiées. À notre connaissance, ce problème n'a été étudié que par quelques auteurs et leurs études ont fourni des résultats extrêmement dispersés. Comme expliqué en détail par Mahaut et al. ([52] ; [53]), les données présentées dans ces travaux ne correspondent en général pas à des suspensions homogènes de particules qui n'interagissent que mécaniquement avec le fluide suspendant. Ces résultats ne sont donc pas applicables à une large gamme de matériaux.

Geiker et al. [40] ont étudié expérimentalement l'effet de la fraction volumique de grosses particules sur les propriétés rhéologiques d'un béton autoplaçant. Ils ont étudié des suspensions polydisperses de particules de formes diverses, mais de même granulométrie. Ils ont supposé que l'effet des granulats sur les propriétés rhéologiques du béton frais pouvaient être étudiées en considérant le béton comme une suspension de grosses particules (granulats) dans un fluide à seuil (pâte de ciment). La pâte de ciment est constituée du ciment des particules fines, de l'eau et des adjuvants : son comportement est celui d'un fluide à seuil. La fraction granulométrie est constituée des granulats et du sable et il est supposé qu'elle se comporte comme si elle était suspendue dans un liquide pur de même comportement que celui de la pâte de ciment : les grosses particules interagissent uniquement par des forces hydrodynamiques non newtoniennes. Les comportements du béton autoplaçant ainsi que celui de la pâte de ciment sont décrits par une loi de Bingham.

Geiker et al. [40] ont observé que les propriétés rhéologiques relatives pour les différentes particules étudiées ont des formes différentes quand on les trace en fonction de la fraction volumique réduite en particule ( $\phi/\phi_m$ ). Une étude plus détaillée des résultats obtenus a montré que la divergence des propriétés rhéologiques se produit pour des valeurs de  $\phi/\phi_m$  différentes de 1, ce qui est en contradiction avec la définition habituelle de la fraction volumique maximale en rhéologie. Dans cette étude,  $\phi_m$  est définie comme la fraction volumique maximale de l'empilement de granulats secs. Par ailleurs, le béton a été testé dans une géométrie cylindrique coaxiale à entrefer large et ses propriétés rhéologiques ont été estimées à l'état stationnaire. Il est bien connu que la migration des particules induite par cisaillement en écoule-

ment est susceptible de se produire dans cette situation (Ovarlez et al. [68]). Les matériaux testés ne sont donc probablement pas homogènes lorsque le système est à l'état stationnaire et il n'est pas évident que les données expérimentales de Geiker et al. [40] puissent être utilisées pour estimer les propriétés rhéologiques d'un matériau bien défini (par exemple un matériau homogène à l'échelle des grosses particules avec une répartition de particules bien définie dans le volume testé). Le fait que les estimations de la contrainte seuil de Geiker et al. [40] sont beaucoup plus grandes que les estimations rapportées par d'autres auteurs ou que celles obtenues dans le présent travail soulève également des doutes sur la validité de leur procédure.

Ancey et Jorrot [1] ont étudié expérimentalement l'influence de l'ajout de particules non colloïdales et non browniennes dans une dispersion d'argile sur la valeur de la contrainte seuil de la suspension. La taille des particules est assez grande pour que la dispersion d'argile puisse être considérée comme homogène à l'échelle des grosses particules. Les auteurs ont choisi de mesurer la contrainte seuil de la suspension au moyen d'un cône d'Abrams (slump test) afin d'éviter les problèmes classiques rencontrés avec la géométrie de Couette (migration des particules, localisation du taux de cisaillement, anisotropie du matériau) (Coussot [22] ; Ovarlez et al. [68]). Ils ont montré que pour des suspensions monodisperses, la contrainte seuil ne dépend pas des caractéristiques des particules (taille, matériau) et que la contrainte seuil relative diverge lorsque la valeur de la fraction volumique en particules tend vers celle de la densité d'empilement maximale. Lorsque les grosses particules sont polydisperses, la valeur de la fraction volumique maximale dépend de la distribution de taille des particules. De même que ce qui est observé pour les suspensions newtoniennes, la contrainte seuil relative diverge pour une valeur de la fraction volumique en particules qui dépend de la distribution de taille des particules. Ils ont également observé dans certains cas que le seuil de contrainte pouvait être une fonction décroissante de la fraction volumique en grosses particules. Cet effet a été attribué par ces auteurs à un phénomène de déplétion. A proximité des grosses particules, les particules d'argile sont expulsées du fluide suspendant. Cet effet induit une augmentation de la concentration en particules d'argile loin des grosses particules qui sont englobées dans une coque de matériau visqueux (eau pure), où la contrainte seuil est nulle. Les grosses particules ne peuvent alors pas contribuer à la contrainte seuil globale et se comportent comme des inclusions (bulles) purement visqueuses. Evidemment, la diminution observée de la contrainte seuil provient d'effets physico-chimiques. Nous rappelons que ces effets sont au-delà du champ d'application de ce travail.



Les travaux présentés dans ce chapitre prolongent les travaux de Mahaut et al. [52] en étudiant expérimentalement et théoriquement le comportement rhéologique d'une suspension bidisperse, isotrope de particules dans un fluide à seuil. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés aux situations pour lesquelles il existe une séparation de taille bien marquée entre les particules colloïdales et les particules non colloïdales présentes dans la suspension. Il est alors possible de considérer la suspension concentrée comme une suspension de particules non colloïdales immergées dans une pâte dont le comportement est connu. Nous nous sommes intéressés aux matériaux dont les particules interagissent avec le fluide interstitiel seulement au travers d'interactions hydrodynamiques. En conséquence, les résultats expérimentaux présentés dans cette étude se concentrent sur le comportement des pâtes dans leur régime solide, c'est à dire, sur l'influence des particules sur le module élastique et la contrainte seuil de la suspension. Dans la section qui suit, on présente les résultats principaux de l'approche par homogénéisation non linéaire du comportement d'une suspension de particules dans un fluide à seuil de Chateau et al. [18].

## 2.2 Homogénéisation du comportement

On considère un volume élémentaire représentatif (VER) de suspension occupant à l'instant considéré le domaine  $\Omega$  de frontière  $\partial\Omega$ . On adopte une représentation eulérienne du mouvement et on se restreint aux situations où les évolutions du système sont quasi-statiques, les forces à distance sont négligeables et la taille caractéristique des particules est beaucoup plus petite que la taille caractéristique du VER (conditions d'homogénéabilité du comportement (Zaoui [93])). Les particules indéformables occupent le domaine  $\Omega_s$  tandis que le fluide porteur occupe le domaine  $\Omega_\ell$ , complémentaire de  $\Omega_s$  dans  $\Omega$ . Pour simplifier, on suppose que la frontière du VER est uniquement constituée de fluide.

Dans le cadre d'une approche par changement d'échelle, le comportement macroscopique de cette suspension s'obtient en résolvant un problème d'écoulement posé sur le VER. Le chargement macroscopique appliqué sur le VER est défini par la condition de Hashin qui relie la vitesse des points situés sur le bord du VER à la valeur du tenseur taux de déformation eulérien macroscopique  $\mathbf{D}$  :

$$(\forall \underline{x} \in \partial\Omega) \quad \underline{u}(\underline{x}) = \mathbf{D} \cdot \underline{x} \quad (2.1)$$

et par la condition d'équilibre sans force de volume :

$$(\forall \underline{x} \in \partial\Omega) \quad \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = 0 \quad (2.2)$$

où  $\boldsymbol{\sigma}$  désigne le tenseur des contraintes de Cauchy à l'échelle microscopique.

### 2.2.1 Suspension de particules dans un fluide newtonien

On s'intéresse tout d'abord à la situation où le fluide porteur est newtonien. Dans ce cas la loi de comportement du fluide s'écrit :

$$(\forall \underline{x} \in \Omega_\ell) \quad \boldsymbol{\sigma} = 2\mu\mathbf{d} - p\boldsymbol{\delta}, \quad \text{avec} \quad \operatorname{tr}\mathbf{d} = 0 \quad (2.3)$$

$\mathbf{d}$  désigne le tenseur des taux de déformation eulérien à échelle microscopique,  $p$  la pression,  $\boldsymbol{\delta}$  le tenseur identité du second ordre et  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide porteur. Les particules sont modélisées comme des particules indéformables ne développant que des interactions hydrodynamiques entre elles. On a donc  $\mathbf{d} = 0$  dans  $\Omega_s$ . On suppose de plus que le fluide adhère parfaitement aux particules. Il est commode pour la suite d'introduire la partie déviatorique du tenseur des contraintes définie en tout point par  $\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma} - 1/3(\operatorname{tr}\boldsymbol{\sigma})\boldsymbol{\delta}$ . La loi de comportement du fluide s'écrit donc :

$$(\forall \underline{x} \in \Omega_\ell) \quad \mathbf{s} = 2\mu\mathbf{d}, \quad \text{avec} \quad \operatorname{tr}\mathbf{d} = 0 \quad (2.4)$$

On suppose dans la suite que les particules sont distribuées de façon isotrope au sein du VER. Dans cette situation, il est bien connu que le comportement global de la suspension est également Newtonien (Zaoui [93]), décrit par la loi de comportement :

$$\mathbf{S} = 2\mu(\phi)\mathbf{D}, \quad \text{avec} \quad \operatorname{tr}\mathbf{D} = 0 \quad (2.5)$$

$\mathbf{S}$  désigne la partie déviatorique du tenseur des contraintes à l'échelle macroscopique et  $\mu(\phi)$  le coefficient de viscosité dynamique macroscopique. On a par ailleurs les relations reliant les grandeurs macroscopiques  $\mathbf{S}$  et  $\mathbf{D}$  à leur contrepartie à l'échelle microscopique :

$$\mathbf{S} = \langle \mathbf{s} \rangle \quad \text{et} \quad \mathbf{D} = \langle \mathbf{d} \rangle \quad (2.6)$$

Dans l'équation (2.6),  $\langle \cdot \rangle$  désigne l'opérateur de moyenne volumique sur le domaine occupé par le VER. Il est intéressant pour la suite de noter qu'en reportant la condition d'indéformabilité des particules solides dans la seconde équation (2.6),

on obtient la relation :

$$\mathbf{D} = (1 - \phi) \langle \mathbf{d} \rangle_\ell \quad (2.7)$$

avec  $\phi$  la fraction volumique occupée par les particules solides dans la suspension et  $\langle \cdot \rangle_\ell$  l'opérateur de moyenne sur  $\Omega_\ell$ .

Le lemme de Hill (Zaoui [93]) exprime la cohérente énergétique de la procédure de changement d'échelle utilisée pour obtenir la loi macroscopique (2.5) à partir de la loi du fluide porteur (2.4) et de la description de la distribution des particules au sein du VER. Pour le problème qui nous intéresse, cette cohérence est assurée si la puissance dissipée par l'écoulement à l'échelle macroscopique est égal à la puissance dissipée calculée à l'échelle microscopique. On a donc :

$$\mathbf{S} : \mathbf{D} = \langle \mathbf{s} : \mathbf{d} \rangle = (1 - \phi) \langle \mathbf{s} : \mathbf{d} \rangle_\ell \quad (2.8)$$

En reportant les lois de comportement (2.4) et (2.5) dans l'équation (2.8), on obtient la relation :

$$\mu(\phi) \mathbf{D} : \mathbf{D} = (1 - \phi) \mu \langle \mathbf{d} : \mathbf{d} \rangle_\ell \quad (2.9)$$

On notera  $\tilde{d}$  (respectivement  $\tilde{D}$ ) la quantité  $\sqrt{\mathbf{d} : \mathbf{d}}$  (respectivement  $\sqrt{\mathbf{D} : \mathbf{D}}$ ) dans la suite. La relation (2.9) exprime que la relation liant le coefficient de viscosité macroscopique  $\mu(\phi)$  au coefficient de viscosité locale  $\mu$  est la contrepartie du phénomène de localisation des taux de déformation au sein de la phase fluide de la suspension.

La résolution du problème d'homogénéisation linéaire pour une suspension isotrope de particules dans un fluide newtonien est un problème qui a été traité par de nombreux auteurs. De nombreux résultats et estimations sont disponibles dans la littérature traitant de la rhéologie (voir Mewis et al. [57]) ou de l'homogénéisation des matériaux hétérogènes (Torquato [85]). On note  $g(\phi)$  le coefficient de proportionnalité entre la viscosité macroscopique et la viscosité microscopique. On a donc :

$$\mu(\phi) = g(\phi) \mu \quad (2.10)$$

En reportant (2.10) dans (2.9), on obtient la relation suivante :

$$\sqrt{\langle \tilde{d}^2 \rangle_\ell} = \sqrt{\frac{g(\phi)}{1 - \phi}} \tilde{D} \quad (2.11)$$

### 2.2.2 Suspension de particules dans un fluide de Hershel-Bulkley

On s'intéresse maintenant à la situation où le fluide porteur obéit à une loi de comportement de Hershel-Bulkley de contrainte seuil  $\tau_c$ , de consistance plastique  $\eta$  et d'index plastique  $n$ . On rappelle que cette loi s'écrit :

$$\begin{cases} \mathbf{s} = (\sqrt{2})^{n+1} \eta \tilde{d}^{n-1} \mathbf{d} + \sqrt{2} \tau_c \mathbf{d} / \tilde{d} & \text{si } \sqrt{1/2 \mathbf{s} : \mathbf{s}} \geq \tau_c \\ \mathbf{d} = \mathbf{0} & \text{si } \sqrt{1/2 \mathbf{s} : \mathbf{s}} \leq \tau_c \\ \text{tr} \mathbf{d} = 0 \end{cases} \quad (2.12)$$

On peut écrire la loi de comportement (2.12) sous la forme d'une loi faisant apparaître une viscosité apparente fonction de  $\tilde{d}$  pour les valeurs de  $\sqrt{1/2 \mathbf{s} : \mathbf{s}}$  supérieures ou égales à  $\tau_c$ . On a alors :

$$\mathbf{s} = 2\mu_{app}(\tilde{d}) \mathbf{d} \quad \text{avec} \quad \text{tr} \mathbf{d} = 0 \quad (2.13)$$

avec le module de viscosité apparente défini en chaque point de la phase fluide par :

$$\mu_{app}(\tilde{d}) = \frac{\tau_c}{\sqrt{2}\tilde{d}} + \eta(\sqrt{2}\tilde{d})^{n-1} \quad (2.14)$$

En utilisant l'écriture (2.13) et (2.14) de la loi de comportement en même temps que les relations (2.1) et (2.2) définissant le chargement appliqué sur le VER, on remplace le problème d'homogénéisation non linéaire original par un problème d'homogénéisation linéaire pour une suspension de particules indéformables dans un fluide incompressible isotrope hétérogène. Toute la difficulté consiste maintenant à calculer, ou plutôt à estimer la valeur prise par la grandeur  $\tilde{d}$  au sein du domaine occupé par la phase fluide dans le VER. L'idée la plus simple consiste à adopter une estimation du module sécant uniforme par phase.

On néglige donc l'influence des hétérogénéités à l'intérieur de la phase fluide de la quantité  $\tilde{d}$  sur les caractéristiques macroscopiques de la suspension. Cette estimation s'écrit :

$$\mu_{app}(\tilde{d}(\underline{x})) = \mu_{app}(\tilde{d}^{eff}) \quad (2.15)$$

où  $\tilde{d}^{eff}$  mesure l'intensité moyenne des taux de déformation au sein de la phase

fluide. Compte tenu de la relation (2.11) liant la moyenne de  $\tilde{d}$  sur le domaine fluide à la valeur du second invariant du taux de déformation macroscopique, on est amené à proposer l'estimation suivante pour  $\tilde{d}^{eff}$  :

$$\tilde{d}^{eff} = \sqrt{\langle \tilde{d}^2 \rangle_\ell} \quad (2.16)$$

pour mesurer le taux de déformation moyen au sein de la phase fluide de la suspension.

A partir de l'équation (2.15), on obtient l'estimation suivante du module de viscosité apparente de la suspension non newtonienne :

$$\mu_{app}(\phi, \tilde{D}) = g(\phi)\mu_{app}(\tilde{d}^{eff}) \quad (2.17)$$

En reportant (2.16) dans (2.17), et en utilisant (2.11) et (2.14), on obtient l'estimation suivante de la viscosité apparente de la suspension :

$$\mu_{app}(\phi, \tilde{D}) = \frac{\tau_c(\phi)}{\sqrt{2}\tilde{D}} + \eta(\phi)(\sqrt{2}\tilde{D})^{n-1} \quad (2.18)$$

avec

$$\tau_c(\phi) = \tau_c \sqrt{(1-\phi)g(\phi)} \quad (2.19)$$

et :

$$\eta(\phi) = \eta g(\phi) \left[ \frac{g(\phi)}{1-\phi} \right]^{\frac{n-1}{2}} \quad (2.20)$$

On prédit donc qu'à l'échelle macroscopique, la suspension se comporte comme un fluide de Herschel-Bulkley de même exposant que celui du fluide porteur et de contrainte critique et de viscosité macroscopique définies par (2.19) et (2.20). Ce résultat ne dépend pas du schéma d'homogénéisation linéaire retenu pour relier la viscosité du fluide porteur à la viscosité de la suspension. La qualité de la prédiction dépend donc uniquement de la pertinence de l'approximation consistant à remplacer le champ hétérogène de module sécant défini sur le domaine occupé par le fluide par sa valeur moyenne. Il est possible de vérifier expérimentalement la validité de cette approximation en utilisant le fait que la relation (2.10) permet également de calculer le module d'élasticité macroscopique d'une suspension isotrope de particules indéformables dispersées dans une matrice élastique incompressible isotrope (les deux problèmes se posent exactement de la même façon). On a donc pour le module

de cisaillement d'une suspension :

$$G'(\phi) = G'g(\phi) \quad (2.21)$$

En combinant les expressions (2.19), (2.20) et (2.21) on obtient les expressions suivantes pour la contrainte seuil et la viscosité de la suspension en fonction du module de cisaillement élastique macroscopique de la suspension :

$$\tau_c(\phi) = \tau_c \sqrt{(1 - \phi)G'(\phi)/G'} \quad (2.22)$$

et :

$$\eta(\phi) = \eta \sqrt{\frac{(G'(\phi)/G')^{n+1}}{(1 - \phi)^{n-1}}} \quad (2.23)$$

La mesure du module d'élasticité de la suspension en fonction de la concentration permet donc d'identifier la fonction  $g(\phi)$  tandis que la comparaison des mesures expérimentales du seuil ou de la viscosité avec les expressions (2.19) et (2.20) permet de juger de la pertinence de l'approximation utilisée. On montre dans la suite à partir de mesures du seuil de contrainte et du module d'élasticité de plusieurs suspensions modèles, que l'approximation utilisée pour obtenir (2.18), (2.19) et (2.20) est tout à fait pertinente pour une large classe de matériaux.

On peut valoriser directement les relations (2.18), (2.19) et (2.20) en utilisant les résultats disponibles dans la littérature pour la viscosité d'une suspension newtonienne de particules. Pour les valeurs importantes de la concentration en particules, il est courant d'utiliser la relation de Krieger et Dougherty [47] :  $g(\phi) = (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}$ , bien que cette relation n'ait pas reçu à notre connaissance de justification rigoureuse dans le cadre des techniques d'homogénéisation. Elle constitue néanmoins une estimation largement acceptée de la fonction  $g(\phi)$  dans le cas linéaire. En reportant cette relation dans (2.19) et (2.20), on obtient les estimations :

$$\tau_c^{KD}(\phi) = \tau_c \sqrt{(1 - \phi)(1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}} \quad (2.24)$$

et :

$$\eta^{KD}(\phi) = \eta(1 - \phi)^{(1-n)/2}(1 - \phi/\phi_m)^{-1.25(n+1)\phi_m} \quad (2.25)$$

avec  $\phi_m$  la fraction volumique d'empilement maximal des particules au sein de la suspension. On constate que les deux grandeurs macroscopiques divergent également

quand  $\phi$  tend vers  $\phi_m$ . On rend donc bien compte du phénomène de blocage de l'écoulement.

Dans la section suivante, on présente les résultats principaux du travail de Mahaut et al. ([18], [53]) pour le comportement d'une suspension de particules monodisperse dans un fluide à seuil obtenus par l'approche d'expérimentale.

## 2.3 Suspension monodisperse de particules dans un fluide à seuil

### 2.3.1 Matériaux et protocole expérimental

#### 2.3.1.1 Matériaux

Dans ces travaux, Mahaut et al. [52] se sont intéressés aux modifications purement mécaniques du comportement de la pâte dues à l'ajout de particules, ils ont formulé des matériaux pour lesquels il existe deux échelles distinctes : celle de la matrice (fluide à seuil) et celle des particules non colloïdales, afin que ces dernières interagissent avec la matrice homogène et non avec ses éléments constitutifs. De plus, ils ont vérifié que les résultats obtenus étaient indépendants des propriétés physico-chimiques des pâtes et des particules, ainsi que de la taille de ces dernières. Pour atteindre cet objectif, ils ont employé des fluides à seuil tirant leurs propriétés de phénomènes physiques différents, et des particules de taille variable aux propriétés de surface différentes (Mahaut et al. [52]).

Ils ont formulé des gels (Carbopol, dont le seuil provient de la formation d'une structure entre chaînes de polymère) possédant des seuils de 40 et 80 Pa, des émulsions inverses (dont le seuil est dû à la tension de surface) ayant des seuils de 10, 40, 70 et 200 Pa, et des suspensions de bentonite (dont le seuil est d'origine colloïdale) qui sont thixotropes et ont des seuils après 10 minutes de repos de 3, 30 et 60 Pa. Des pâtes de ciment ont également été étudiées (Mahaut et al. [53]).

Ils ont utilisé comme particules des billes de polystyrène cristal (hydrophobes), de densité  $1.05 \text{ g/cm}^3$ , ayant des diamètres de 80, 140 et  $315 \mu\text{m}$ , ainsi que des billes de verre (hydrophiles) de densité  $2.5 \text{ g/cm}^3$  et de diamètre  $140 \mu\text{m}$ , 2 et 3 mm. Ces caractéristiques assurent que les particules ne sédimentent pas dans les pâtes

étudiées au repos (Coussot [22]). L'échelle de la microstructure de toutes ces pâtes étant très inférieure à celle des particules (Mahaut et al. [52]), il est donc considéré que les particules sont en interaction avec un milieu homogène.

Les billes sont soigneusement lavées dans un bain à ultrasons pour enlever les résidus de surfactant employés lors du processus de fabrication des billes et éviter des modifications du comportement des pâtes de nature physico-chimique. En effet, il est observé que les billes de polystyrène non lavées liquéfient le Carbopol. Les billes sont donc lavées jusqu'à ce qu'un comportement stable et reproductible soit observé.

### 2.3.1.2 Protocole expérimental

Les expériences ont été effectuées sur un rhéomètre Bohlin C-VOR 200 avec une géométrie Vane utilisant un croisillon à 6 pales de diamètre 25 mm plongé dans une cuve rugueuse de diamètre 36 mm pour éviter le glissement de la pâte aux parois (Coussot [22]) et avoir un entrefer suffisamment large par rapport aux particules. Pour les billes de verre millimétriques, un croisillon de 40 mm de diamètre a été plongé dans une cuve de 100 mm de diamètre.

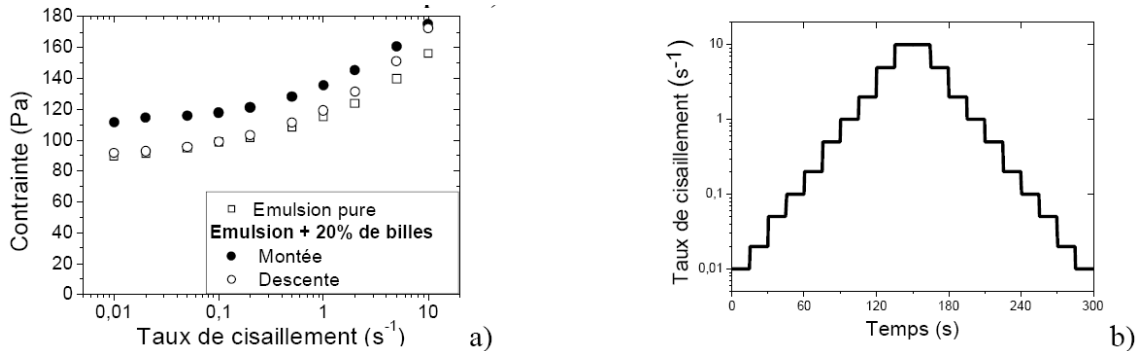


FIG. 2.1 – a) Courbe d'écoulement de l'émulsion pure, et comportement lors de paliers ascendants et descendants de taux de cisaillement pour une suspension de 20 % de billes de polystyrène ( $80 \mu m$ ) dans une émulsion. (figures extraites de Mahaut [51])

Le module élastique est déterminé en effectuant des expériences d'oscillation en régime linéaire. Plusieurs méthodes de détermination du seuil ont été testées (les protocoles de préparation et de mesures sont détaillés dans (Mahaut et al. [52])).



Les difficultés rencontrées pour effectuer cette détermination sont illustrées sur la Fig. 2.1-a : au cours de cette expérience effectuée sur une émulsion chargée de 20 % en volume en particules, une série de paliers ascendants de taux de cisaillement espacés logarithmiquement, d'une durée individuelle de 30 s (de façon à atteindre un état stationnaire) a été suivie d'une série de paliers descendants (Fig. 2.1-b). On remarque que les états stationnaires atteints lors de la montée et lors de la descente sont différents, ce qui indique l'existence de phénomènes irréversibles ; lors de la descente, à l'approche de l'arrêt, la courbe d'écoulement macroscopique de la pâte granulaire se confond quasiment avec celle de l'émulsion seule. Le seuil d'arrêt de la pâte granulaire ainsi défini semble alors être le même que celui de l'émulsion pure (ou tout au moins fortement appauvrie en particules). On peut expliquer facilement ce phénomène : il y a eu migration des particules vers l'extérieur de la cuve (Ovarlez et al. [68]) ; à basse vitesse, l'écoulement se localise (Coussot [22]) à proximité de l'outil, et ne concerne donc plus que l'émulsion pure (ou très appauvrie) dont on mesure les propriétés. Cette déplétion en particules de la zone proche du croisillon est visible à l'oeil nu pour les matériaux transparents (Carbopol). Toute mesure impliquant un écoulement est a priori sensible à ce phénomène. Le même problème se retrouve si on effectue un précisaillement : toute mesure du seuil d'écoulement, quelle que soit la méthode employée, donne alors une valeur correspondant à un matériau moins concentré (proche du seuil de l'émulsion pure).

Ceci pourrait expliquer également pourquoi après un écoulement, lors de la descente en contrainte, les résultats entre émulsion et suspension ne sont pas très différents, le seuil est mesuré dans une zone où il ne reste que de l'émulsion, les particules ayant migrées lors de la montée et surtout lors de l'écoulement. D'autre part la valeur du seuil «statique» est nettement différente car il est mesuré pour une suspension homogène, au sein de laquelle aucune migration ne s'est encore produite. On voit ici toute l'importance à apporter à la préparation des essais, à la mise en place des échantillons, afin d'obtenir un matériau homogène.

C'est pourquoi il a été choisi d'effectuer des mesures en partant d'un matériau au repos, non précisailé, et d'effectuer la mesure à faible vitesse de cisaillement ( $0.01s^{-1}$ ) ; le seuil est alors défini par le plateau (émulsion, Carbopol) ou le pic (bentonite) de contrainte atteint pour une déformation de l'ordre de l'unité (Dzuy et Boger, [34]). La mesure de seuil est considérée comme destructrice, et toute nouvelle mesure nécessite de préparer un nouveau matériau. Cette méthode a en outre comme avantage

de garantir une structure isotrope du matériau qui facilite la comparaison aux calculs d'homogénéisation.

La pâte granulaire est préparée par mélange manuel des billes et de la pâte dans la cuve de mesure. Un malaxage vigoureux est effectué pour notamment déstructurer les matériaux thixotropes (bentonites). Un suivi de l'élasticité est ensuite effectué pendant 10 minutes; enfin, le seuil est mesuré, le temps de repos durant lequel la mesure d'élasticité a été faite (10 min) étant suffisamment long pour ne pas être sensible à l'éventuelle non reproductibilité de la procédure de déstructuration initiale du matériau. Il a été vérifié que la mesure d'élasticité par oscillations est non destructrice vis-à-vis de la mesure de seuil (Mahaut et al. [52]).

### 2.3.2 Résultats expérimentaux

On présente ici les résultats expérimentaux concernant l'influence de l'ajout de particules sphériques monodisperses dans un fluide à seuil sur le module de cisaillement élastique et la contrainte seuil du mélange obtenus par Mahaut et al. ([52], [53]).

#### 2.3.2.1 Élasticité

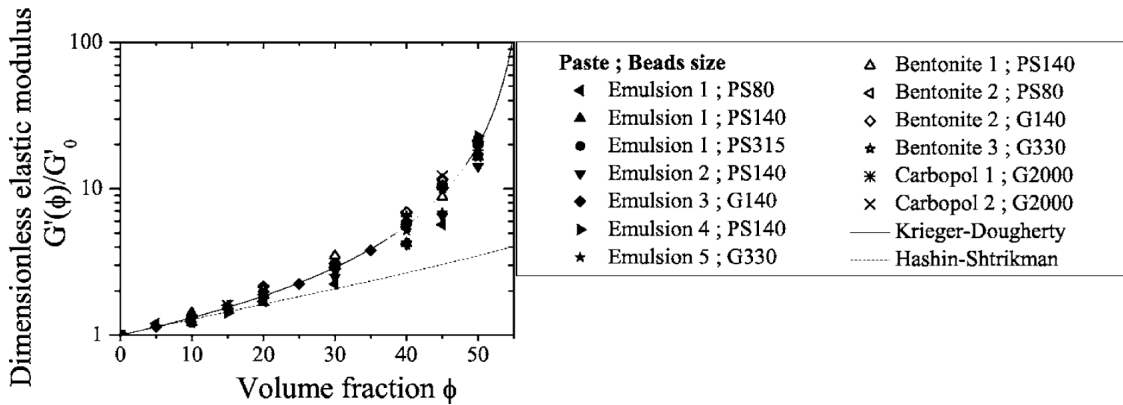


FIG. 2.2 – Evolution du module élastique réduit en fonction de la fraction volumique pour les matériaux étudiés. Borne inférieure d'Hashin-Shtrikman (Hashin et Shtrikman [43]), ajustement par une loi de Krieger-Dougherty  $G'(\phi)/G' = (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}$  avec  $\phi_m = 0.57$ . (Figure extraite de Mahaut et al. [52])

La Fig. 2.2 montre l'évolution du module élastique réduit en fonction de la fraction volumique en billes pour des billes de diverses tailles plongées dans les différents flu-

des à seuil. On remarque que cette évolution semble indépendante des paramètres suivants : valeur et origine du seuil de la pâte, taille et nature des billes. De nouveau, ceci est en accord avec l'hypothèse que les modifications du comportement apporté par les particules sont d'origines purement mécaniques.

Les résultats expérimentaux représentés sur la Fig. 2.2 valident bien le fait qu'il existe une fonction permettant d'exprimer le module d'élasticité adimensionnel (c'est-à-dire  $G'(\phi)/G'$ ) pour une suspension isotrope de sphères monodisperse dans un matériau à comportement linéaire incompressible. Par ailleurs, les données expérimentales sont bien prédites par une loi de Krieger-Dougherty (Mahaut et al. [52]) :

$$G'(\phi) = G' \times (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m} \text{ avec } \phi_m = 0.57 \quad (2.26)$$

Il convient de remarquer que la loi de Krieger-Dougherty est utilisée ici pour prédire le module d'élasticité de la suspension alors que cette loi est en général utilisée pour estimer la viscosité des suspensions newtoniennes de sphères monodisperse. On constate également sur la Fig. 2.2 que les données expérimentales sont toutes situées au dessus de la borne inférieure de Hashin-Strikman (Hashin et Shtrikman [43]), valable pour un matériau biphasique isotrope.

### 2.3.2.2 Seuil de contrainte

La Fig. 2.3 montre des exemples de mesures de seuil effectuées à vitesse faible  $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$  de cisaillement. On observe bien un plateau dans le cas de l'émulsion (Fig. 2.3a) et du Carbopol, qui définit le seuil du matériau. Dans le cas de la bentonite (Fig. 2.3b) on observe un pic de contrainte : le seuil est défini comme le maximum de ce pic. De même que pour l'élasticité, les résultats obtenus semblent indépendants des paramètres : valeur et origine du seuil de la pâte, taille et nature des billes. Le bilan de ces expériences est présenté sur la Fig. 2.4 ainsi l'ajustement des données par la loi (2.24) avec de nouveau  $\phi_m = 0.57$ . De nouveau, l'accord entre la prédiction théorique et les valeurs mesurées est très bon compte tenu de la dispersion des résultats expérimentaux. Il faut noter que les mêmes résultats ont été obtenus pour des particules plongées dans des pâtes de ciment (Mahaut et al. [53]).

### 2.3.2.3 Relation entre élasticité et seuil de contrainte.

Dans la section (2.2) , nous avons présenté une relation générale, indépendante du schéma d'homogénéisation, entre la viscosité et le seuil d'une suspension de par-

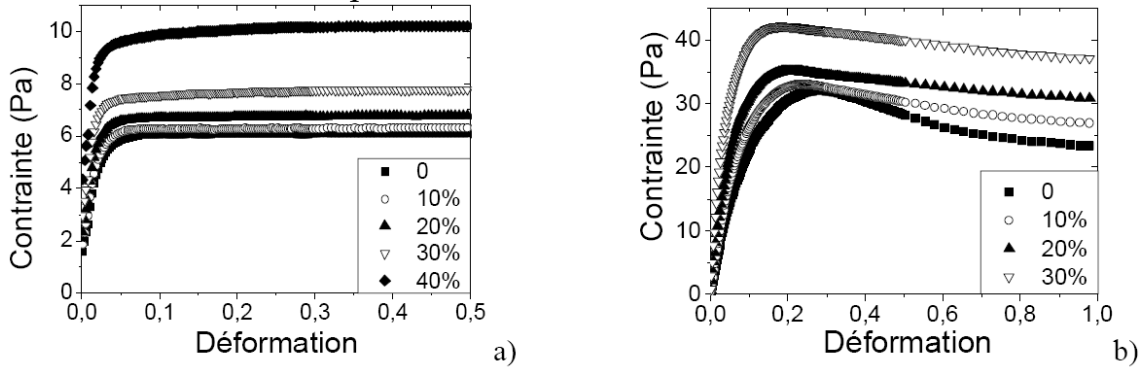


FIG. 2.3 – a) Mesures de seuil effectuées à vitesse faible  $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$  pour des billes de polystyrène de  $140 \mu\text{m}$  plongées à diverses fractions volumiques dans une émulsion. b) Même chose dans une suspension de bentonite. (Figure extraite de Mahaut [51])

ticules plongées dans un fluide de Herschel-Bukley obtenu par une méthode d'homogénéisation non linéaire (Chateau et al. [18]). D'après cette relation, le seuil d'une suspension obtenue en mélangeant un volume  $\phi$  de particules rigides à un volume  $1 - \phi$  de pâte de seuil  $\tau_c$  et de module d'élasticité  $G'$  dépend du module d'élasticité de la suspension au travers de la relation  $\tau_c(\phi)/\tau_c = \sqrt{(1 - \phi)G'(\phi)/G'}$ .

La Fig. 2.5 représente la comparaison entre le module d'élasticité réduit modifié  $\sqrt{(1 - \phi)G'(\phi)/G'} - 1$  et le seuil réduit modifié  $\tau_c(\phi)/\tau_c - 1$  en coordonnées logarithmique. Dans ce diagramme, la relation théorique (2.22) est représentée par la droite d'équation  $y = x$ . On constate de nouveau un bon accord entre la prédiction théorique et les mesures expérimentales. On remarque que l'accord entre résultats expérimentaux et prédiction théorique est plus satisfaisant pour les suspensions de particules dans l'émulsion que dans la bentonite. Cette différence provient probablement du fait que le comportement de l'émulsion est plus proche de celui d'un matériau élastoplastique parfait que celui de la bentonite, qui est thixotrope et dont le comportement sous le seuil est visiblement non linéaire. Cet accord valide les approximations utilisées pour construire l'estimation des caractéristiques globales de la suspension à comportement non linéaire en fonction des caractéristiques de la suspension à comportement linéaire de même morphologie indépendamment du choix particulier d'une expression analytique pour estimer les caractéristiques globales linéaires du matériau.

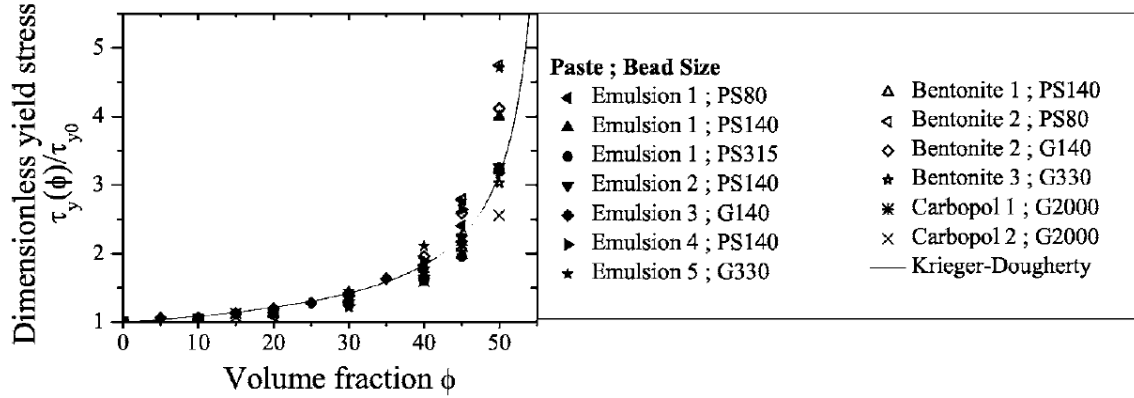


FIG. 2.4 – Evolution du seuil réduit en fonction de la fraction volumique pour l'ensemble des matériaux étudiés. On trace également l'évaluation de l'estimation sécante et un ajustement des données par une loi  $\tau_c(\phi)/\tau_c = \sqrt{(1-\phi)(1-\phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}}$  avec  $\phi_m = 0.57$ . (Figure extraite de Mahaut et al. [52])

## 2.4 Suspension bidisperse de particules dans un fluide à seuil

Dans la section (2.3) nous avons présenté les résultats expérimentaux du comportement de suspensions monodisperses de particules rigides sphériques immergées dans des fluides à seuil obtenus par Mahaut et al. ([52],[53]). Pour évaluer la contribution mécanique des particules aux caractéristiques globales de la pâte, plusieurs types de billes, de tailles différentes, ont été mélangés à différents fluides à seuil. Les résultats obtenus ont permis de valider le fait que l'on pouvait rendre compte de l'influence des particules au travers du seul paramètre  $\phi/\phi_m$ . Or, il est bien connu que la valeur de fraction volumique d'empilement maximal dépend de la répartition granulométrique des particules ajoutées à la pâte pour élaborer la suspension. Nous nous intéressons donc à l'influence de la polydispersité de la phase granulaire sur les propriétés globales de la suspension dans la suite.

### 2.4.1 Matériaux et méthodes

#### 2.4.1.1 Matériaux

Afin d'évaluer l'influence purement mécanique des particules sur le comportement d'une pâte, nous avons formulé des matériaux pour assurer la séparation d'échelle entre la matrice (le fluide à seuil) et les particules noncolloïdales. Nous n'avons utilisé

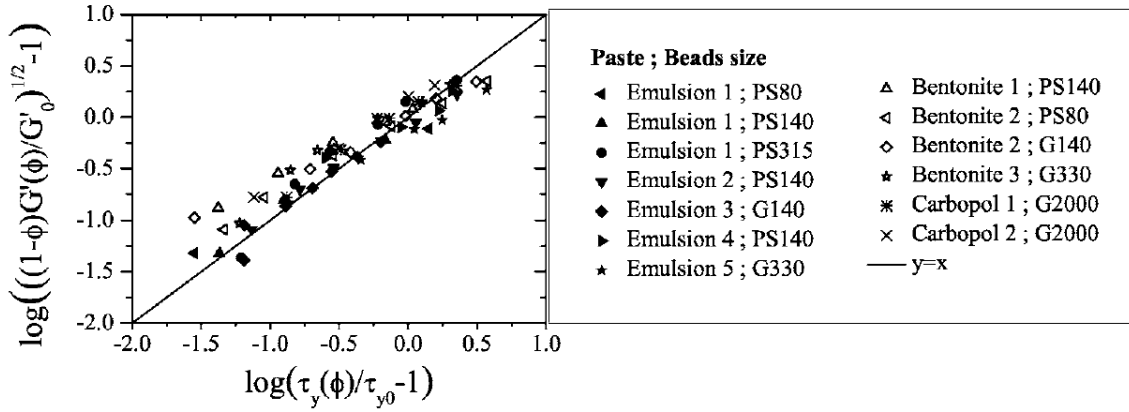


FIG. 2.5 – Module élastique réduit modifié  $\sqrt{(1-\phi)G'(\phi)/G'_0} - 1$  en fonction du seuil réduit  $\tau_c(\phi)/\tau_c - 1$  pour les diverses suspensions étudiées expérimentalement. (Figure extraite de Mahaut et al. [52])

que l'émulsion inverse<sup>1</sup> comme un fluide suspendant, parce que Mahaut et al. [52] ont obtenu les résultats les plus stables et les plus reproductibles avec ce matériau dans le cas monodisperse. En outre, le comportement de l'émulsion inverse est très proche du comportement élastoplastique parfait d'un fluide à seuil (cf. Fig. 2.6). L'émulsion inverse est d'eau dans de l'huile. Pour préparer une émulsion, nous dispersons tout d'abord l'émulsifiant à concentration 7% dans la phase continue constituée par une huile de Dodécane. La phase dispersée est une solution de Chlorure de Calcium ( $CaCl_2$ ) à 300 g/L est ajoutée lentement sous une agitation forte (6000 tr/min) pour une heure. La taille de la microstructure est de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$  observée par une microscope.

Les particules sont soit des billes de polystyrène cristal (hydrophobes) de densité 1.05 g/cm<sup>3</sup>, soit que des billes de verre (hydrophiles) de densité 2.5 g/cm<sup>3</sup>. Nous avons utilisé des mélanges bidisperse de billes de polystyrène de diamètre de 80  $\mu\text{m}$  et 315  $\mu\text{m}$  (rapport de taille des particules  $\lambda = 3.94$ ) et des mélanges bidisperses de billes de verre de diamètre 40  $\mu\text{m}$  et 330  $\mu\text{m}$  ( $\lambda = 8.25$ ). Les billes sphériques sont mélangées à l'état sec. La composition du mélange de particules est définie par la proportion volumique en petites particules  $\xi = V_F/(V_F + V_G)$  où  $V_F$  (resp.  $V_G$ ) représente la fraction volumique des particules fines (resp. grosses). Les particules sont ensuite dispersées dans un volume  $V_\ell$  du fluide suspendant. Leur fraction volu-

<sup>1</sup>Emulsion inverse : on parle d'émulsion inverse quand la densité de la phase dispersée est inférieure à la densité de la phase continue.

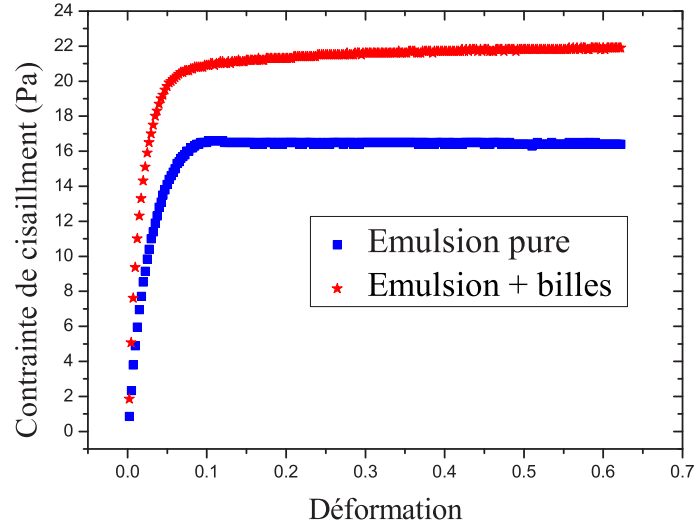


FIG. 2.6 – Contrainte de cisaillement en fonction de déformation en appliquant un taux de cisaillement faible  $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$  pour une émulsion pure (carré) et pour une suspension bidisperse (étoile) de 30% de bille polystyrène de diamètre  $80 \mu\text{m}$  mixé avec 70% de bille polystyrène de diamètre  $315 \mu\text{m}$  avec  $\phi = 0.3$  dans la même émulsion

mique totale est définie par :  $\phi = (V_F + V_G)/(V_F + V_G + V_\ell)$ . Enfin, le fluide et les particules sont mélangées manuellement dans des directions aléatoires, afin d'obtenir un matériau isotrope et homogène. Dans tous les cas, la contrainte seuil de la pâte est suffisamment grande pour éviter la sédimentation des particules dans le régime solide. La condition pour laquelle une particule sphérique tombe sous l'effet de la gravité à travers un fluide à seuil au repos s'obtient en écrivant la balance entre la force de gravité, la poussée d'Archimède et la force de traînée. Une sphère de rayon  $a$  plongée dans un fluide à seuil, de seuil d'écoulement  $\tau_c$  ne se déplace pas sous l'effet de la gravité si  $4/3(\rho - \rho_c)ga^3$  est inférieur à  $4k_c\pi a^2\tau_c$  avec  $k_c \simeq 3.5$ ,  $\rho_c$  la densité du fluide à seuil et  $g$  la gravité (Coussot [22]). Dans nos expériences, la force de traînée critique est au moins 30 fois supérieure à la force de gravité, ce qui assure une stabilité au repos donc pour les mesures de module élastique. Lorsqu'on applique un faible taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  à la suspension, la sédimentation induite par cisaillement peut se produire avec une vitesse  $V \simeq 2/9(\rho - \rho_c)ga^2/(\tau_c/\dot{\gamma})$  (Ovarlez et al. [67]). Nos mesures de la contrainte seuil (voir ci-dessous) consistent à appliquer à la suspension

un taux de cisaillement très faible ( $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$ ). On a donc  $V < 0.1 \mu\text{ms}^{-1}$  pour tous les matériaux étudiés : la sédimentation induite par cisaillement est négligeable pendant la durée des expériences (moins de 100 secondes).

#### 2.4.1.2 Méthode rhéologique

Les procédures de mesure ont été présentées dans la section (2.3). En utilisant la même procédure que pour les suspensions monodisperses, on a mesuré le module élastique et le seuil de contrainte des suspensions bidisperses que nous avons élaborées.

### 2.4.2 Résultats

Dans cette section, nous présentons les résultats pour le module d'élasticité et le seuil de contrainte mesurés que nous avons étudiés pour tous les systèmes bidisperses. Nos résultats sont comparés à ceux obtenus par Mahaut et al. [52] pour des suspensions monodisperses.

#### 2.4.2.1 Module élastique

Les valeurs du module élastique mesurées sur toutes les suspensions que nous avons formulées sont rassemblées dans la Tab. 2.1 et tracées sur la Fig. 2.7 en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$ . Deux rapports de taille ( $\lambda = 3.94$  et  $\lambda = 8.25$ ) et différentes valeurs de la proportion relative en petites particules  $\xi$  ont été testés. Comme classiquement observé pour les suspensions polydisperses de particules dans un fluide newtonien, les points expérimentaux ne tombent pas sur une courbe maîtresse. Néanmoins, nous observons que le module élastique adimensionnel est une fonction croissante de la fraction volumique en particules  $\phi$  à  $\lambda$  et  $\xi$  donnés. En outre, tous les points expérimentaux pour les suspensions bidisperse sont situés en-dessous de la courbe représentant la loi de Krieger-Dougherty  $G'(\phi)/G' = (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}$  avec  $\phi_m = 0.57$  valable pour les suspensions monodisperses. Ces résultats sont parfaitement cohérents avec les résultats de la littérature décrits en introduction. Il est également intéressant de noter que toutes les valeurs mesurées du module élastique sont plus grandes que la borne inférieure de Hashin-Shtrikman [43] :

$$G'(\phi)/G' > (2 + 3\phi)/(2 - 2\phi) \quad (2.27)$$

qui est une borne inférieure théorique calculée dans le cas général d'un matériau



$\phi$	$\lambda = 1.00$	$\lambda = 3.94$ $\xi = 0.1$	$\lambda = 3.94$ $\xi = 0.3$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.1$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.2$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.3$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.5$
0.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
0.10			1.27				
0.15	1.69					1.40	
0.20			1.79				
0.30	3.12		2.65			2.66	
0.40	5.19		4.13			3.78	
0.45	9.43	7.94	5.32	6.28	5.13	4.45	3.85
0.48	11.12		7.43	8.66	6.70	5.60	5.02
0.50	22.28	14.80	9.01	9.30	8.14	6.24	5.36
0.53	41.91	25.11	12.64	16.71	10.11	8.62	7.58
0.55	76.20	40.04		25.56	14.08	9.60	9.10
0.57		70.54	24.55	43.19	19.10	11.46	11.96
0.60			39.80			15.67	23.65
0.64			106.25				68.00
0.68						55.29	

TAB. 2.1 – Module élastique adimensionnel  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'(0)$  en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$  pour tous les matériaux étudiés.

biphasique (une phase infiniment rigide et une phase linéaire élastique isotrope incompressible) isotrope à l'échelle microscopique ainsi qu'à l'échelle macroscopique.

#### 2.4.2.2 Seuil de contrainte

Nous présentons maintenant les résultats des mesures de contrainte seuil effectuées sur les différentes suspensions que nous avons formulées. Les données expérimentales sont rassemblées dans la Tab. 2.2 et représentées graphiquement sur la Fig. 2.8 en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$ .

Le seuil de contrainte adimensionnel présente les mêmes tendances que celles observées pour les mesures du module élastique adimensionnel. C'est une fonction croissante de la fraction volumique en particules lorsque le rapport de taille de particules  $\lambda$  et la proportion volumique en petites particules  $\xi$  du mélange sont donnés. De plus, comme observé pour les suspensions monodisperses (Mahaut et al. [52]), pour un mélange donné, l'augmentation de la contrainte seuil en fonction de la fraction volumique en particules est beaucoup plus faible que l'augmentation du module élastique.

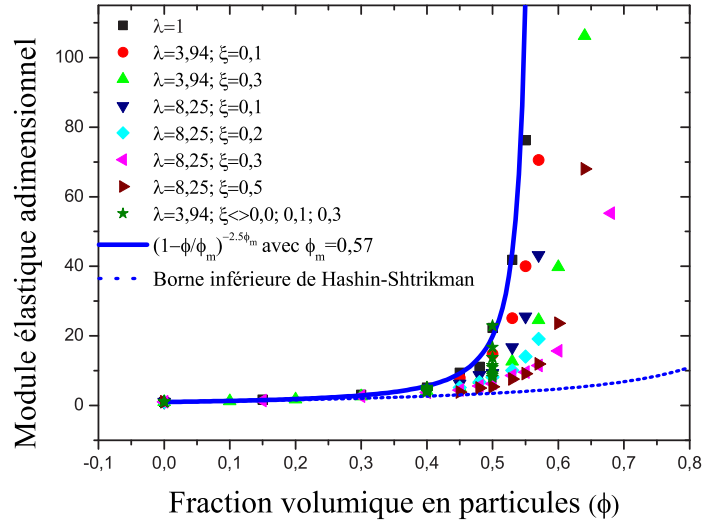


FIG. 2.7 – Module élastique adimensionnel  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'(0)$  de suspensions bidisperses en particules sphériques en fonction de la fraction volumique en particules pour différents rapports de taille  $\lambda$  et différentes valeurs de la proportion volumique en petites particules  $\xi$ . La ligne continue représente l'équation (2.26). La ligne pointillée représente la borne inférieure de Hashin-Shtrikman.

### 2.4.3 Divergence des propriétés rhéologiques : Seuil de rigidité de contact

En rassemblant tous les résultats expérimentaux décrits à la section précédente, on observe les mêmes tendances pour les évolutions de  $G'$  et de  $\tau_c$  en fonction de la densité volumique en particules  $\phi$ .  $G'$  et  $\tau_c$  ont tendance à diverger quand  $\phi$  approche d'une valeur « critique » dépendant à la fois de  $\xi$  et de  $\lambda$ . Cette caractéristique est à rapprocher des constatations expérimentales rapportées dans la littérature consacrée au comportement des suspensions polydisperses. Dans la suite de ce paragraphe, nous nous intéressons à la prédiction de la densité critique associée à cette divergence des propriétés de la suspension en reportant du comportement des suspensions monodisperses.

$\phi$	$\lambda = 1.00$	$\lambda = 3.94$ $\xi = 0.1$	$\lambda = 3.94$ $\xi = 0.3$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.1$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.2$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.3$	$\lambda = 8.25$ $\xi = 0.5$
0.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
0.10			1.10				
0.15	1.11					1.11	
0.20			1.13				
0.30	1.26		1.32			1.31	
0.40	1.65		1.54			1.60	
0.45	2.26	1.68	1.73	1.75	1.73	1.69	1.69
0.48	2.87		2.16	1.94	1.65	1.99	1.74
0.50	3.53	2.45	2.35	2.32	2.03	2.01	1.94
0.53	5.32	2.81	2.91	3.26	2.16	2.24	2.10
0.55	8.00	4.27		4.23	2.43	2.41	2.54
0.57		6.13	4.06	5.34	2.77	2.81	2.59
0.60			4.58			3.26	5.07
0.64			7.30				9.06
0.68						5.64	

TAB. 2.2 – Contrainte seuil adimensionnelle  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c(0)$  en fonction de la fraction volumique de particules  $\phi$  pour toutes les suspensions étudiées.

#### 2.4.3.1 Modèle d'empilement

Mahaut et al. [52] ont montré que le module élastique  $G'$  d'une suspension isotrope de billes sphériques monodisperses est bien fitté par la loi de Krieger-Dougherty [47] avec  $\phi_m = 0.57$ . La valeur  $\phi_m$  de la densité en particules à laquelle le module d'élasticité  $G'$  diverge définit certainement le seuil de rigidité de contact des particules suspendues dans le fluide : si  $\phi < \phi_m$ , les particules interagissent (hydrodynamiquement) par l'intermédiaire du fluide suspendant. Si  $\phi \geq \phi_m$ , les particules sont suffisamment proches les unes des autres pour qu'il y ait réseau de contact couvrant l'ensemble du matériau et que les interactions interparticulaires (contact, friction, élasticité des billes...) jouent un rôle majeur, qui conduit à la divergence apparente de  $G'$ . Il est intéressant de noter que la contrainte seuil globale d'une suspension monodisperse augmente fortement aussi lorsque  $\phi$  tend vers  $\phi_m = 0.57$ .

A ce stade,  $\phi_m$  est juste un paramètre fitté. Toutefois, d'après les tendances observées pour l'ensemble des propriétés de la suspension dans la section (2.4.2), il est évident que ce seuil de rigidité de contact est étroitement liée à la fraction volumique maximale d'empilement (Chang et Powell [17] ; Gondret et Petit [41] ; Probst et

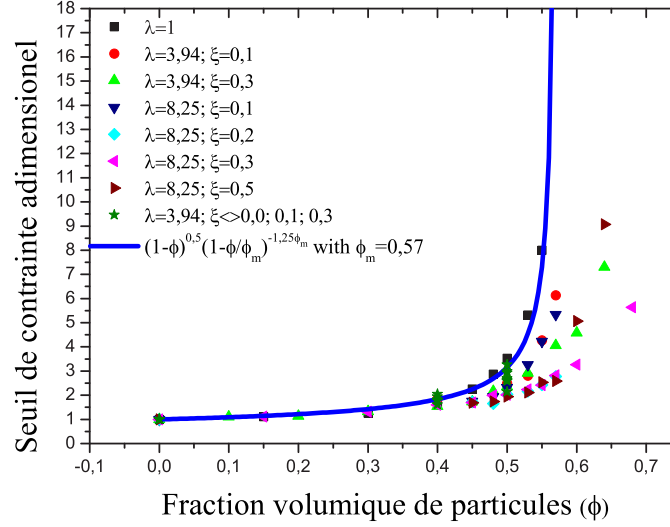


FIG. 2.8 – Seuil de contrainte adimensionnel  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c(0)$  mesurées sur des suspensions bidisperses de particules sphériques en fonction de la fraction volumique en particules pour différents rapports de tailles  $\lambda$  et différentes valeurs de la proportion volumique en petites particules  $\xi$ . La ligne continue représente la loi  $\tau_c(\phi)/\tau_c(0) = \sqrt{(1-\phi)(1-\phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}}$  avec  $\phi_m = 0.57$  proposée par Chateau et al. [18] pour les suspensions monodisperses.

al. [73] ; Frankel et Acrivos [39]). Ceci suggère d'utiliser des modèles d'empilement pour prédire comment la valeur du seuil de rigidité de contact varie en fonction de la composition du mélange de particules. En outre, il est largement accepté que la densité d'un empilement des billes monodisperses dépend des forces interparticulaires et de la façon dont le mélange est produit. Par exemple, Dong et al. [30] ont obtenu des valeurs de la fraction volumique maximale d'empilement variant de 0 à 0.64 selon les interactions existant entre les particules (0.64 pour un empilement aléatoire de billes non frottantes et non cohésives et 0 pour un empilement aléatoire de billes avec une forte force de van der Waals). Lorsque les forces de cohésion entre les particules ne dominent pas les autres forces, la fraction volumique maximale d'empilement, ou plus précisément, le seuil de rigidité de contact varie entre 0.5 et 0.58 (Cumberland et Crawford [27] ; Onoda et Liniger [65] ; Dong et al. [30]). La valeur du seuil de rigidité de contact  $\phi_m = 0.57$  déterminée expérimentalement pour une suspension monodisperse, en supposant qu'elle est représentative de notre pro-

cessus de mélange, peut être utilisée comme un paramètre du modèle d'empilement.

Différents modèles ont été proposés dans la littérature à prédire la densité d'empilement d'un mélange granulaire. Pour un mélange bidisperse de particules, la fraction volumique maximale d'empilement  $\phi_m$  est une fonction du rapport de taille des particules  $\lambda$ , la proportion volumique en petites particules  $\xi$  et la façon dont l'empilement a été obtenu (Ben Aïm et Le Goff [8] ; Dodds [29] ; de Larrard [28]). Dans la plupart des modèles de la littérature, le processus d'empilement est pris en compte à travers un indice scalaire. Dans ce travail, nous n'avons pas besoin de prendre en compte le processus de mélange dans le modèle parce que nous avons toujours utilisé la même procédure pour préparer nos matériaux. Nous allons calculer la valeur de la fraction volumique maximale d'empilement de mélanges granulaires bidisperses  $\phi_m$  en considérant la valeur de la fraction volumique maximale de l'empilement monodisperse comme un paramètre libre. La valeur de  $\phi_m$  pour des sphères identiques sera prise égale à 0.57 comme observée expérimentalement.

Nous avons choisi d'utiliser le modèle de de Larrard [28] qui permet de rendre compte des phénomènes d'interactions entre particules et est donc applicable pour toutes les classes d'arrangement granulométrique. Ce modèle utilise trois paramètres principaux pour déterminer la compacité maximale d'un mélange de particules polydisperse dans un volume unité. Il tient compte non seulement des tailles relatives des particules et de la composition du mélange mais également de la façon dont les particules s'arrangent au sein du mélange (notion de la classe dominante). Dans ce modèle, deux configurations différentes de mélanges bidisperses sont distinguées : petites particules dominantes lorsque les grosses particules sont insérées dans l'ensemble de petites particules de la matrice et grosses particules dominantes lorsque de petites particules remplissent les espaces vides entre les grosses particules. En outre, deux interactions géométriques sont prises en compte dans ce modèle :

**Effet de desserrement** : lorsqu'une petite particule est insérée dans un empilement de grosses particules (qui constituent alors la classe dominante), et dans le cas où la petite particule n'est pas assez petite pour se placer dans un vide formé par l'empilement des grosses particules, il y a localement un desserrement de l'empilement de grosses particules qui induit une diminution de la densité occupée par les grosses particules (cf. Fig.2.9).

**Effet de paroi** : Lorsqu'une grosse particule est insérée dans un empilement local de fines particules (qui constituent alors la classe dominante), on constate que

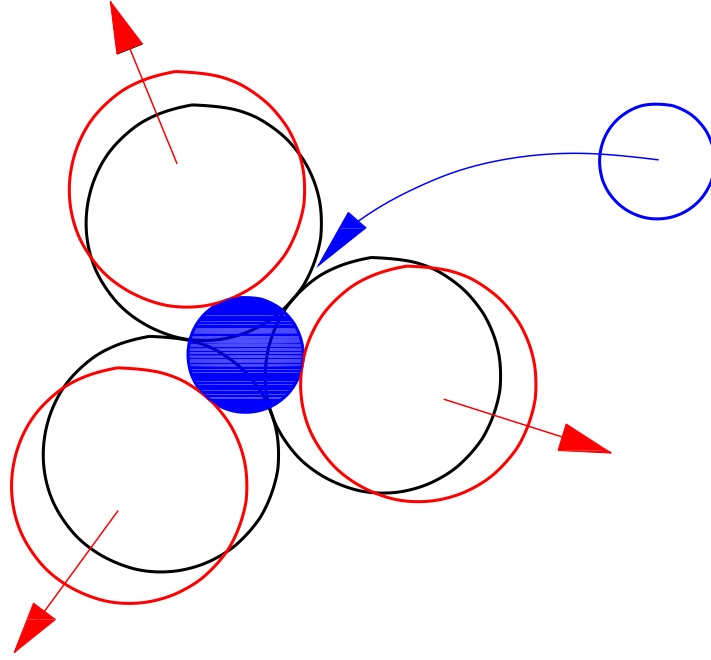


FIG. 2.9 – Effet de desserrement dû à l’ajout d’une petite particule dans un empilement de grosses particules.

les petites particules situées à proximité immédiate de la grosse particule ne sont plus empilées de façon aussi compacte (cf. Fig. 2.10). Cet effet de paroi provoque à une diminution du volume effectif occupé par les petites particules.

Bournonville et al. [14] ont utilisé une version légèrement modifiée du modèle de de Larrard [28] pour estimer la fraction volumique maximale d’empilement de mélanges de particules polydisperses secs. Ils ont montré qu’il est possible d’utiliser directement la mesure expérimentale de la densité d’empilement associée au processus d’empilement particulier utilisé comme un paramètre du modèle. En outre, ils ont déterminé expérimentalement les fonctions décrivant les effets de paroi et de desserrement décrits ci-dessus. Ils ont mesuré des densités maximales d’empilements de billes monodisperses variant de 0.59 à 0.62 pour des billes de diamètre compris entre  $50\mu\text{m}$  et  $320\mu\text{m}$  ; nous avons utilisé exactement les mêmes équations pour estimer le seuil de divergence des suspensions bidisperses, la seule différence étant la valeur du seuil de divergence pour les suspensions monodisperses. Puisque nous nous intéressons uniquement à des mélanges bidisperses, nous ne donnons que les relations permettant d’estimer le seuil de rigidité de contact de suspensions bidisperses. Le

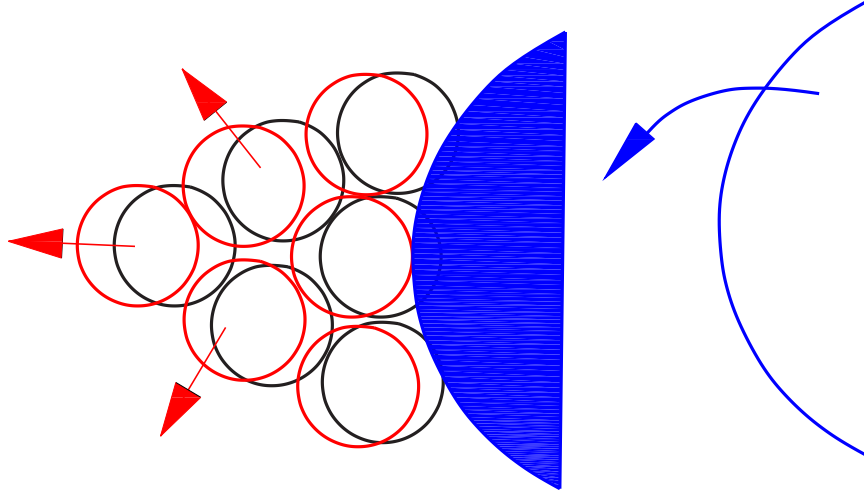


FIG. 2.10 – Effet de paroi dû à l'insertion d'une grosse particule dans un empilement de fines particules.

lecteur désirant un exposé plus complet du modèle de de Larrard et de son application à des empilements de plus de deux tailles de particules est renvoyé aux publications de de Larrard [28] et de Bournonville et al. [14].

Pour calculer le seuil de rigidité de contact d'un mélange bidisperse de particules de diamètres  $d_G$  et  $d_F$  avec  $d_G > d_F$ , on doit d'abord calculer la compacité maximale des petites particules dominantes  $\phi_m^{F\text{-dom}}$  et la compacité maximale dans la situation des grosses particules dominantes  $\phi_m^{G\text{-dom}}$  définies respectivement par les relations :

$$\phi_m^{F\text{-dom}} = \frac{\phi_m^F}{1 - (1 - \xi) \left( 1 - \phi_m^F + b_{FG} \left( \phi_m^F - \frac{\phi_m^F}{\phi_m^G} \right) \right)} \quad (2.28)$$

$$\phi_m^{G\text{-dom}} = \frac{\phi_m^G}{1 - \xi (1 - a_{GF} \phi_m^G / \phi_m^F)} \quad (2.29)$$

où  $\phi_m^F$  (resp.  $\phi_m^G$ ) désigne le seuil de rigidité de contact de l'empilement de petites particules monodisperses (resp. grosses) de la suspension,  $a_{GF}$  (resp.  $b_{FG}$ ) une fonction décrivant l'effet de desserrement (resp. paroi) et  $\xi$  la proportion volumique de petites

particules dans le mélange sec. Dans la suite, nous adoptons les valeurs  $\phi_m^G = \phi_m^F = 0.57$  déterminées expérimentalement par Mahaut et al. [52]. Les fonctions  $a_{GF}$  et  $b_{FG}$  ont été déterminées expérimentalement par Bournonville et al. [14]. Elles ne dépendent que du rapport de taille des particules  $\lambda = d_G/d_F$ .

$$a_{GF} = \left( 1 - \left( 1 - \frac{1}{\lambda} \right)^{1.13} \right)^{0.57} \quad (2.30)$$

$$b_{FG} = \left( 1 - \left( 1 - \frac{1}{\lambda} \right)^{1.79} \right)^{0.82} \quad (2.31)$$

Enfin, le seuil de rigidité de contact d'une suspension bidisperse est défini par :

$$\phi_m = \min(\phi_m^{G\text{-dom}}, \phi_m^{F\text{-dom}}) \quad (2.32)$$

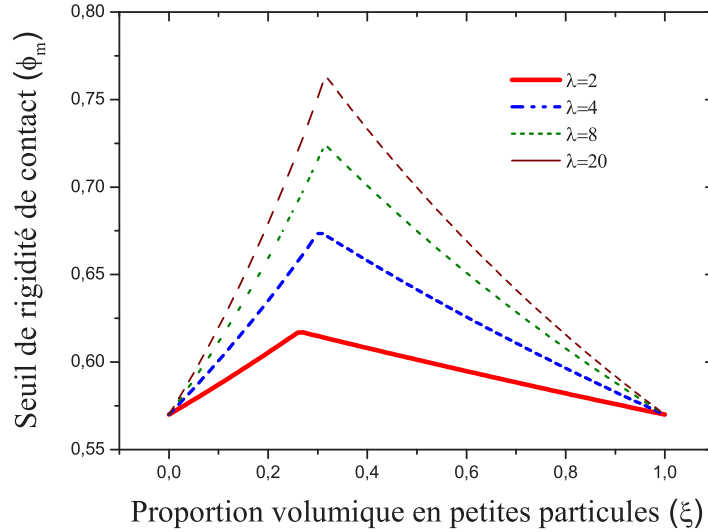


FIG. 2.11 – Valeurs du seuil de rigidité de contact en fonction du paramètre  $\xi$ , (proportion volumique relative en petites particules dans le mélange granulaire) pour différentes valeurs du rapport de taille  $\lambda$ .

Les prédictions du seuil de rigidité de contact du modèle sont représentées sur la Fig. 2.11 en fonction de la proportion volumique en petites particules pour plusieurs valeurs du rapport de taille  $\lambda$ .



Il est à noter que quelle que soit la valeur du rapport de taille  $\lambda$ , la valeur maximum du seuil de rigidité de contact est un point singulier dans le diagramme du seuil de rigidité de contact  $\phi_m$  en fonction de la fraction volumique en petites particules  $\xi$ . Même si un tel point singulier n'est pas observé expérimentalement pour un empilement bidisperse de particules sec, il semble être une propriété partagée par tous les modèles théoriques distinguant deux morphologies d'empilement (Gondret et Petit [41] ; de Larrard [28]). de Larrard [28] a corrigé cet effet indésirable par l'introduction d'un index scalaire prenant en compte le processus de mélange. D'autres modèles ont été construits pour prédire des variations régulières de la densité de l'empilement en fonction de la proportion volumique en petites particules (Gondret et Petit [41]). A notre connaissance, il n'est pas évident que les modèles prédisant des évolutions régulières de la compacité d'empilement soient meilleurs que les modèles prédisant des évolutions singulières en certains points. En outre, il sera montré dans la suite que les équations (2.28) à (2.32) sont suffisamment précises pour prédire de manière satisfaisante l'influence de la polydispersité sur le module élastique et le seuil de contrainte de suspensions bidisperses. En conséquence, l'existence de ce point singulier ne pose pas de problème dans le cadre de cette étude.

#### 2.4.3.2 Propriétés rhéologiques en fonction de la fraction volumique solide réduite

Dans la section (2.4.3), nous avons modélisé la valeur du seuil de rigidité de contact  $\phi_m$  définie comme la fraction volumique pour laquelle les propriétés rhéologiques d'une suspension divergent. Nous traçons maintenant le module élastique adimensionné  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  et le seuil de contrainte adimensionné  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  de toutes les suspensions bidisperses étudiées en fonction de la fraction volumique solide réduite  $\phi/\phi_m$ . Ces évolutions sont représentées sur les Fig. 2.12 et Fig. 2.13.

Nous observons tout d'abord qu'en fonction de la fraction volumique réduite  $\phi/\phi_m$ , les valeurs mesurées du module élastique adimensionné se placent sur une courbe maîtresse. Comme les données expérimentales pour les suspensions monodisperses se répartissent aussi sur cette courbe, on en déduit qu'il est possible de décrire cette courbe en utilisant une équation de même type que celle de Krieger-Dougherty. Cette question sera abordée dans la suite. Il n'est pas évident qu'une telle propriété soit valable pour le seuil de contrainte adimensionné, même si ces données expérimentales sont moins dispersés que quand elles sont tracées en fonction de la fraction volu-

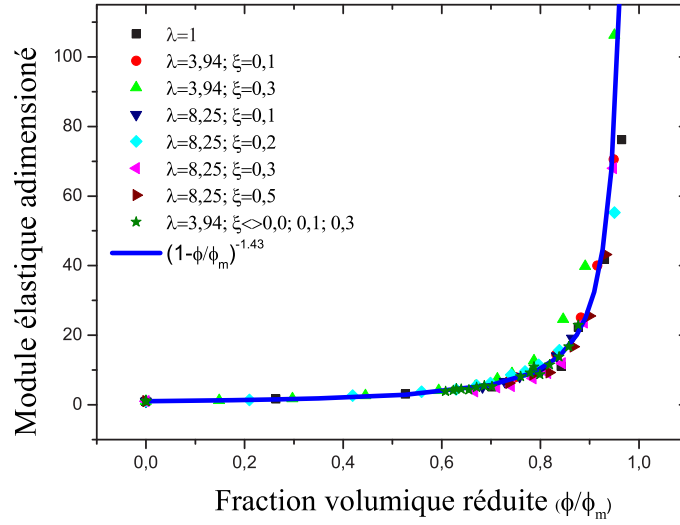


FIG. 2.12 – Module élastique adimensionné  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  en fonction de la fraction volumique réduite de particules  $\phi/\phi_m$  pour toutes les suspensions bidisperses étudiées. Les seuils de rigidité de contact  $\phi_m$  ont été calculés en utilisant les équations (2.28) – (2.32) du modèle modifié de de Larrard.

mique en particules (Fig. 2.13). Nous observons que les deux courbes ont tendance à diverger pour  $\phi/\phi_m = 1$ . Cette dernière observation est une forte indication que le modèle d'empilement que nous utilisons est capable de prédire correctement l'impact de la distribution de taille des particules sur la valeur de la fraction volumique pour laquelle les propriétés rhéologiques d'une suspension bidisperse divergent.

#### 2.4.4 Analyse et discussion

Dans la section (2.4.3), nous avons montré que lorsque nous traçons les propriétés rhéologiques de suspensions bidisperses en fonction de la fraction volumique réduite  $\phi/\phi_m$ , on obtient des courbes qui divergent lorsque la fraction volumique solide réduite  $\phi/\phi_m$  tend vers 1. Le but de cette section est de proposer des estimations globales pour les propriétés rhéologiques des suspensions bidisperses.

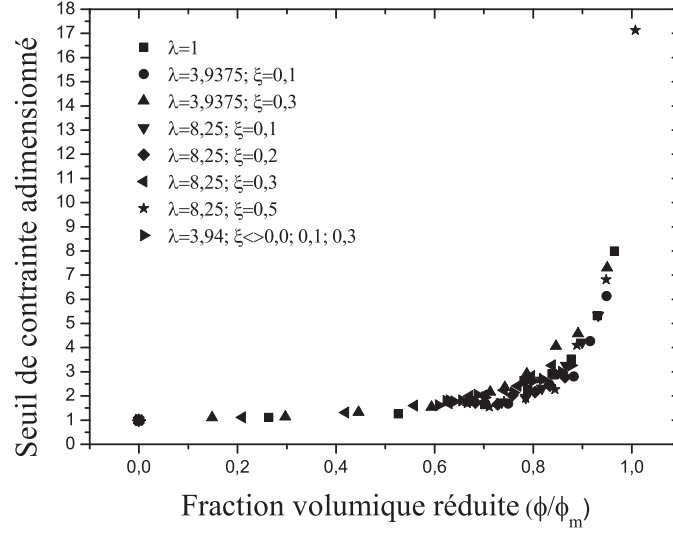


FIG. 2.13 – Seuil de contrainte réduit  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  en fonction de la fraction volumique réduite de particules  $\phi/\phi_m$  pour toutes les suspensions bidisperses étudiées. Les seuils de rigidité de contact  $\phi_m$  ont été calculés en utilisant les équations (2.28) – (2.32) du modèle modifié de de Larrard.

#### 2.4.4.1 Module élastique

Nous avons observé que les modules élastiques adimensionnés de toutes les suspensions bidisperses tracés en fonction de la fraction volumique réduite  $\phi/\phi_m$  appartiennent à une courbe maîtresse. En modifiant légèrement l'équation de Krieger-Dougherty  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G' = (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}$  de sorte que l'exposant ne dépende pas de  $\phi_m$ , nous obtenons une nouvelle estimation pour le module d'élasticité de la suspension bidisperse :

$$G'(\phi, \lambda, \xi)/G' = (1 - \phi/\phi_m)^{-1.43} \quad (2.33)$$

qui est représentée par une ligne pleine sur la Fig. 2.12. De manière satisfaisante, les données expérimentales sont très bien décrites par l'équation (2.33). Comme nous avons  $1.43 = 2.5 \times 0.57$  pour la valeur de l'exposant dans l'équation (2.33), l'équation de type Krieger-Dougherty modifiée (2.33) est en accord avec l'équation (2.26) uniquement pour  $\phi_m = 0.57$ . Toutefois, même si un bon accord entre les données expérimentales et l'équation théorique est obtenu, il est à noter que le développement

en série au premier ordre de l'équation (2.33) par rapport à la variable  $\phi$  donne la relation d'Einstein [35] :

$$G'(\phi\lambda, \xi)/G' = 1 + 2.5\phi + O^2(\phi) \quad (2.34)$$

uniquement pour les suspensions monodisperses, c'est à dire lorsque  $\phi_m = 0.57$ . La divergence entre les estimations de la viscosité des suspensions concentrées de particules solides et l'équation d'Einstein est classique (Chang et Powell [17] ; Frankel et Acrivos [39]). Eilers (Stickel et Powell [77]) a proposé une estimation (l'équation (2.35)) de la viscosité d'une suspension qui est compatible à la fois avec l'équation d'Einstein et le fait que la viscosité diverge quand la fraction volumique solide réduite tend vers 1. Cependant, cette estimation n'est pas définie par une fonction unique de la fraction volumique solide réduite  $\phi/\phi_m$  et donne les valeurs surestimées en comparant avec nos résultats expérimentaux. Comme nos données expérimentales sont bien décrites par l'équation (2.33), nous laissons ce problème de côté dans ce travail.

$$\eta^{re} = \left(1 + \frac{2.5\phi}{2(1 - \phi/\phi_m)}\right)^2 \quad (2.35)$$

Sur la Fig 2.14, on a tracé le module élastique adimensionné mesuré expérimentalement  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  en fonction de la proportion volumique en petites particules  $\xi$ , pour le rapport de taille fixé  $\lambda = 3.94$ , et pour deux valeurs de la fraction volumique en particules  $\phi = 0.4$  et  $\phi = 0.5$ . Les données expérimentales sont détaillées dans la Tab. 2.3

La courbe  $G'(\phi\lambda, \xi)/G'$  présente un minimum pour une valeur de  $\xi$  proche de 0.40. Cette valeur minimisant le module élastique doit correspondre au mélange optimal de particules pour un rapport de taille  $\lambda = 3.94$ . Les données expérimentales sont comparées avec les prédictions de l'équation (2.33) sur la Fig. 2.14, les seuils de rigidité de contact sont calculés à l'aide le modèle d'empilement présenté dans la section (2.4.3).

Le bon accord entre les données expérimentales et les prédictions de l'équation (2.33) montre que la combinaison du modèle d'empilement de de Larrard avec l'équation de Krieger-Dougherty permet de décrire les principales propriétés du système étudié. Cependant, le modèle ainsi construit prévoit que le module d'élasticité de l'empile-

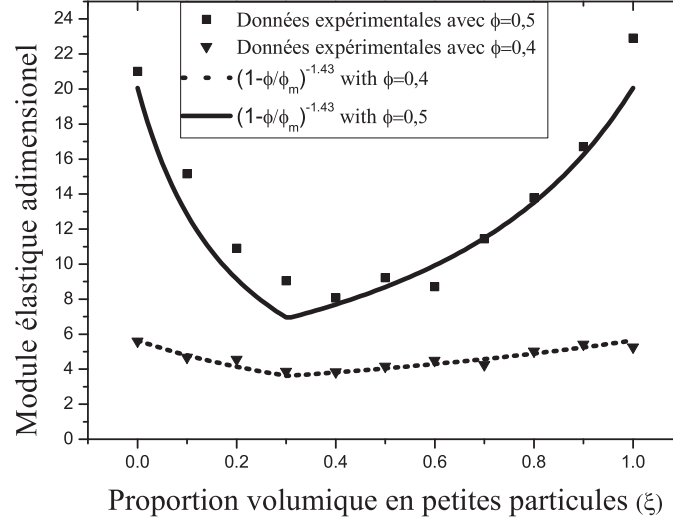


FIG. 2.14 – Module élastique adimensionné  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  en fonction de la proportion volumique en petites particules  $\xi$  pour des suspensions de billes de polystyrène de diamètre  $80 \mu\text{m}$  et  $315 \mu\text{m}$  avec une fraction volumique en particules  $\phi = 0.4$  (triangle) et  $\phi = 0.5$  (carré). La ligne pointillée (resp. continue) représente l'équation (2.33) calculée pour  $\phi = 0.4$  (resp.  $\phi = 0.5$ ). Les seuils de rigidité de contact  $\phi_m$  ont été calculés en utilisant les équations (2.28) – (2.32) du modèle modifié de de Larrard.

ment bidisperse de particules de rapport de taille  $\lambda = 3.94$  est minimum pour la valeur  $\xi = 0.3$  alors que le module élastique adimensionné mesuré pour la suspension est minimum pour  $\xi$  proche de 0.4. Cet écart vient peut-être du modèle d'empilement qui a été validé pour des billes à l'état sec alors que dans nos expériences les billes sont suspendues dans un fluide dans ce travail. Par ailleurs, un examen attentif des données expérimentales suggère que la courbe du module élastique adimensionné en fonction de la proportion volumique en petites particules est lisse tandis que la tangente à la courbe théorique est discontinue au point où  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  atteint sa valeur minimale. Comme mentionné dans la section (2.4.3), cette singularité de la courbe théorique provient clairement du modèle d'empilement. Même si ce modèle d'empilement pourrait être amélioré pour obtenir des courbes théoriques lisses, nous pensons que le modèle utilisé dans ce travail est suffisamment précis compte tenu de la dispersion des données expérimentales.

Elastic Modulus	$\phi = 0.4$	$\phi = 0.5$	Yield stress	$\phi = 0.4$	$\phi = 0.5$
$\xi = 0.0$	5.60	21.01	$\xi = 0.0$	1.91	3.33
$\xi = 0.1$	4.68	15.16	$\xi = 0.1$	1.84	2.93
$\xi = 0.2$	4.56	10.90	$\xi = 0.2$	1.81	2.61
$\xi = 0.3$	3.87	9.05	$\xi = 0.3$	1.94	2.33
$\xi = 0.4$	3.84	8.07	$\xi = 0.4$	1.61	2.14
$\xi = 0.5$	4.16	9.23	$\xi = 0.5$	1.79	2.58
$\xi = 0.6$	4.51	8.71	$\xi = 0.6$	1.77	2.62
$\xi = 0.7$	4.25	11.45	$\xi = 0.7$	1.81	2.69
$\xi = 0.8$	5.03	13.78	$\xi = 0.8$	1.80	2.92
$\xi = 0.9$	5.43	16.71	$\xi = 0.9$	2.04	2.99
$\xi = 1.0$	5.26	22.91	$\xi = 1.0$	1.94	3.26

TAB. 2.3 – Module élastique adimensionnel  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  et seuil de contrainte adimensionnel  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  en fonction de la proportion volumique en petites particules  $\xi$ , pour  $\lambda = 3.94$ .

#### 2.4.4.2 Module élastique vs seuil de contrainte

Dans la section (2.2), nous avons présenté une relation générale, indépendante du schéma d'homogénéisation reliant la viscosité et le seuil d'une suspension de particules plongées dans un fluide de Herschel-Bukley obtenu par une estimation sécante (Chateau et al. [18]). Pour obtenir cette relation, il a été supposé que les particules sont rigides, noncolloïdales et qu'il n'existe d'interactions physico-chimiques entre les particules et la pâte. Lorsque ces conditions sont satisfaites, la viscosité apparente de la suspension cisailée au taux de déformation macroscopique  $\tilde{D}$  est reliée à la viscosité apparente du fluide suspendant au taux de déformation effectif  $\tilde{d}^{eff}$  par l'équation (2.17) :  $\mu_{app}(\phi, \tilde{D}) = \mu_{app}(\tilde{d}^{eff})G'(\phi)/G'$ . L'équation (2.17) montre que, dans un milieu non-linéaire (ou non newtonien), l'augmentation de la viscosité de la suspension contenant une fraction volumique de particules  $\phi$  est la même que celle d'un milieu linéaire (newtonien ou élastique) dont la viscosité serait la viscosité apparente  $\mu_{app}(\tilde{d}^{eff})$  du fluide suspendant cisailé. Dans ce cas, une dépendance supplémentaire de la viscosité apparente en  $\phi$  provient de la dépendance de  $\tilde{d}^{eff}$  en  $\phi$ . Comme les particules sont indéformables, le facteur de cisaillement  $\tilde{d}^{eff}/\tilde{D}$  est supérieur à un. Comme il a été rappelé dans la section (2.2) que l'estimation optimale de cette quantité est donnée par (Chateau et al. [18]) :

$$\tilde{d}^{eff}/\tilde{D} = \sqrt{\frac{G'(\phi)/G'}{1 - \phi}} \quad (2.36)$$

Dans l'équation (2.36), la quantité  $1 - \phi$  apparaît parce que le taux de déformation subi par le fluide suspendant est lié au taux de déformation global à travers un opérateur de moyenne portant uniquement sur le fluide interstitiel seulement. Ceci explique pourquoi les propriétés non linéaires ne peuvent pas dépendre seulement de la fraction volumique solide réduite  $\phi/\phi_m$ .

Cette analyse permet d'expliquer physiquement pourquoi l'augmentation du seuil de contrainte dû à l'ajout de particules est plus faible que celle du module élastique. Alors que la viscosité apparente d'une suspension est reliée à la viscosité apparente dans le fluide porteur par la même relation que celle qui relie élasticité globale et élasticité locale, le taux de déformation subi par le fluide suspendant est supérieur au taux de déformation global appliqué à la suspension. Comme la viscosité apparente d'un fluide à seuil parfait est une fonction décroissante du taux de déformation, la localisation du taux de déformation en diminuant la viscosité apparente du fluide porteur réduit l'effet de consolidation dû à l'ajout de particules.

Nous avons tracé sur la Fig. 2.15 le seuil de contrainte adimensionné  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c - 1$  en fonction de la quantité adimensionnelle  $\sqrt{(1 - \phi)G'(\phi, \lambda, \xi)/G'} - 1$  en coordonnées logarithmiques pour tous les systèmes étudiés dans le but de vérifier que l'équation (2.22) est toujours valable. Nous observons un très bon accord entre nos résultats expérimentaux et l'estimation théorique (2.22) obtenue par approche micromécanique (qui est représentée par la ligne droite  $y = x$  dans les coordonnées choisies).

Ces résultats montrent que les données expérimentales valident l'hypothèse qu'une estimation uniforme du taux de déformation dans le domaine fluide suspendant permet d'estimer de manière précise le seuil de contrainte macroscopique d'une suspension bidisperse à partir de son module élastique macroscopique.

#### 2.4.4.3 Seuil de contrainte

En reportant l'estimation (2.33) pour les propriétés linéaires de la suspension dans l'équation (2.22), on obtient l'estimation pour le seuil de contrainte global de la suspension :

$$\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c = \sqrt{(1 - \phi)(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}} \quad (2.37)$$

Nous avons tracé sur la Fig. 2.16 le seuil de contrainte adimensionné  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c - 1$  en fonction de la quantité adimensionnelle  $\sqrt{(1 - \phi)(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}} - 1$  en coordon-

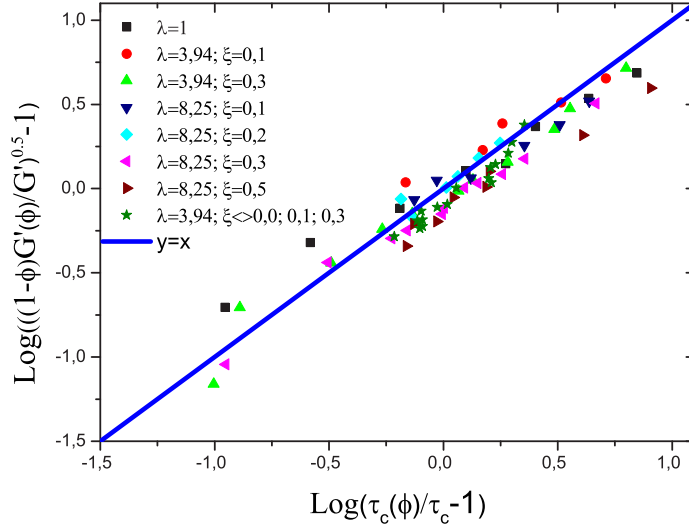


FIG. 2.15 – Seuil de contrainte adimensionné modifié  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  en fonction de  $\sqrt{(1-\phi)G'(\phi, \lambda, \xi)/G'}$  modifiée pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapports de taille  $\lambda$  et toutes proportions volumiques en petites particules  $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne  $y = x$  représente la relation théorique (2.22)

nées logarithmiques pour tous les matériaux que nous avons étudiés dans le but de vérifier que l'estimation (2.37) représente de façon précise les données expérimentales.

Même si la comparaison n'est pas parfaite, nous pensons que l'accord entre les valeurs expérimentales et le modèle théorique (2.37) est suffisamment précise pour prédire le seuil de contrainte des suspensions bidisperses étudiées dans ce travail. Afin de comparer la précision de l'estimation du seuil de contrainte globale de la suspension (2.37) avec la précision de l'estimation globale du module élastique (2.33), nous avons tracé sur la Fig. 2.17 les données expérimentales pour le module élastique adimensionné en fonction de la quantité  $(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}$ .

Nous observons tout d'abord que les deux estimations semblent représenter aussi précisément les données expérimentales. Afin d'évaluer quantitativement ce point, nous avons calculé les erreurs par la méthode des moindres carrés pour le seuil



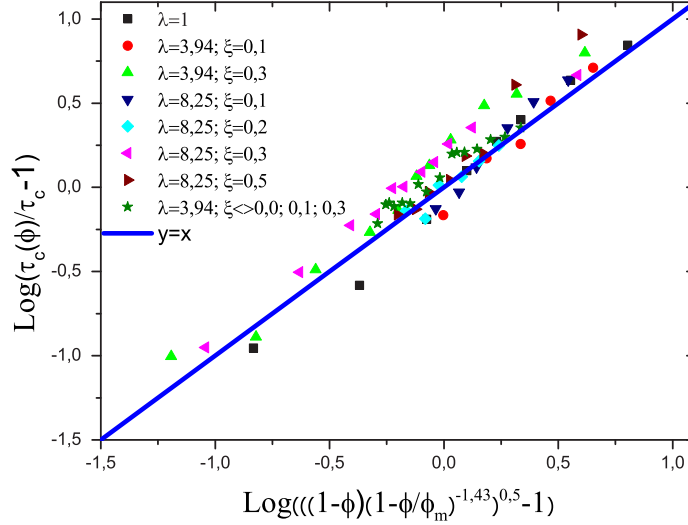


FIG. 2.16 – Seuil de contrainte adimensionné modifié  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  en fonction de  $\sqrt{(1-\phi)(1-\phi/\phi_m)^{-1.43}}$  modifiée pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapports de taille  $\lambda$  et toutes proportions volumiques en petites particules  $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne  $y = x$  représente la relation théorique (2.37)

de contrainte adimensionné (Fig. 2.16) et pour le module élastique adimensionné (Fig. 2.17). Pour la quantité  $y$ , l'erreur au sens des moindres carrés est définie par :

$$\text{Err}_y = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (y_i^{\text{exp}} - y_i^{\text{th}})^2 \quad (2.38)$$

où  $N$  désigne le nombre de points mesurés,  $y_i^{\text{exp}}$ , le  $i$ ème point mesuré expérimentalement et  $y_i^{\text{th}}$  la valeur théorique associée. Nous avons trouvé  $\text{Err}_G = 0.0093$  pour l'estimation du module élastique et  $\text{Err}_{\tau_c} = 0.0186$  pour l'estimation du seuil de contrainte. Ces deux erreurs étant du même ordre de grandeur, on peut conclure que l'estimation (2.37) pour la contrainte seuil est aussi précise que l'estimation (2.33) du module élastique.

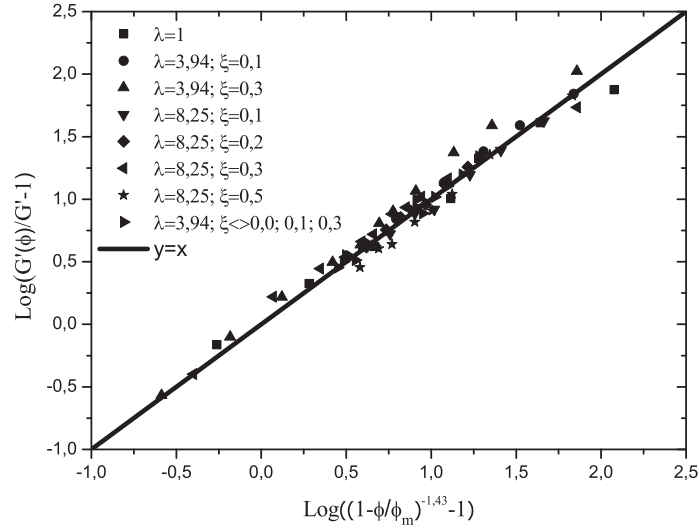


FIG. 2.17 – Module élastique adimensionné  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  en fonction de  $(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}$  pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapport de taille  $\lambda$  et toutes proportions volumiques en petites particules  $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne  $y = x$  représente la relation théorique (2.33)

## 2.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons étudié expérimentalement et théoriquement le module d'élasticité et le seuil de contrainte d'une suspension bidisperse isotrope de particules noncolloïdales dispersées dans un fluide à seuil. Nous nous sommes concentrés sur l'impact des effets purement mécaniques des particules sur les propriétés rhéologiques globales des suspensions. Pour cela, nous avons présenté les procédures d'expérimentales et résultats principaux obtenus avec des suspensions monodisperses par Mahaut et al. [52]. Ces procédures ont été utilisées pour étudier expérimentalement le comportement de suspensions bisdisperses dans ce travail. Nous avons également rappelé les principaux résultats obtenus par l'approche d'homogénéisation nonlinéaire pour les suspensions isotropes de particules indéformables dans un fluide de Hershel-Bulkley. (Chateau et al. [18].)

Nous avons ensuite étudié l'effet de la polydispersité des particules sur les valeurs des paramètres rhéologiques d'une suspension bidisperse. Nous avons observé que

le module élastique relatif (le module élastique de la suspension divisé par celui du fluide interstitiel) et la contrainte seuil relative (la contrainte seuil de la suspension divisée par celle du fluide interstitiel) sont plus faibles que ceux de la suspension monodisperse à même valeur de la fraction volumique en particules. De plus, nous avons montré que la contrainte seuil relative de la suspension est reliée au module élastique relatif et à la fraction volumique occupée par les particules par la même équation que dans le cas monodisperse.

Nous avons montré aussi que l'effet de la polydispersité peut être modélisé par un modèle d'empilement des particules sec qui permet d'estimer la fraction volumique maximum d'empilement. Nous avons finalement proposé des estimations globales pour le module élastique et le seuil de contrainte d'une telle suspension. Cela montre qu'il suffit de déterminer la fraction volumique maximale d'empilement  $\phi_m$  et la dépendance du module élastique de la suspension monodisperse en fonction de  $\phi$  pour prédire le comportement non newtoniens de suspensions bidisperses, ce qui devrait encore être valable pour les suspensions polydisperses plus complexes.

Dans le chapitre suivant, une nouvelle approche de changement d'échelle sera présentée dans le but de modéliser l'influence de la distribution de taille des particules sur les propriétés mécaniques globales d'un composite contenant une forte concentration en particules.

---

### Effets de la polydispersité sur les propriétés effectives d'un composite à particules : approche micromécanique

---

#### 3.1 Introduction

Les propriétés des matériaux composites ont été largement étudiées au cours des dernières décennies en raison de la généralisation de leur utilisation. Les propriétés mécaniques des matériaux composites dépendent des propriétés de la microstructure du matériau (orientations, formes, fraction volumique, distribution spatiale de phases...) des propriétés des phases constitutives et des interfaces entre constituants.

De nombreuses études ont été menées afin de prédire les propriétés mécaniques effectives des matériaux composites renforcés par les particules. On peut se référer aux Hashin et Shtrikman [43] ; Torquato et Lado [86] ; Mori et Tanaka [59] ; Eshelby [36] ; Milton et Phan-Thien [58] ; Sen, Lado et Torquato [66], pour ne citer que les plus importantes, sinon les plus connues. Hashin et Shtrikman [43] ont proposé une borne supérieure et une borne inférieure pour les modules d'élasticité effectifs de matériaux multiphasés. Leur méthode consiste à utiliser les principes variationnels de la théorie de l'élasticité linéaire. Ils ont obtenu de meilleures bornes que les bornes de Voigt et de Reuss. Des bornes d'ordre supérieur ont également été proposées par Torquato et Lado [86] ; Milton et Phan-Thien [58] ; Sen, Lado et Torquato [66]. Par ailleurs, des estimations pour les modules élastiques effectifs de matériaux composites ont

été proposées en utilisant des méthodes de milieux effectifs comme la méthode auto-cohérente, le schéma différentiel, la méthode autocohérente généralisée et le schéma de Mori-Tanaka... Une limitation importante des méthodes de milieux effectifs est qu'elles ne tiennent compte que de la forme des inclusions (particules), des fractions volumiques et des propriétés mécaniques des phases constituant le matériau. Par contre, ces méthodes ne permettent pas de rendre compte de la distribution de taille de particules sur les propriétés effectives du matériau composite. Comme montré dans le chapitre 2, il est bien connu que ces effets de taille conditionnent les propriétés des matériaux. Ce raisonnement est valable non seulement pour les travaux cités ci-dessus mais aussi pour les modèles plus élaborés comme le modèle à trois-phases (Christensen et Lo [20] ; Hervé et Zaoui [44]) et le modèle à n-phases (Hervé et Zaoui [45]), ou d'autres.

La raison pour laquelle ces modèles sont incapables de prendre en compte l'effet de la distribution de taille est que les bornes ou les estimations pour les propriétés mécaniques globales sont obtenues à partir de la solution de problèmes du type inclusion-matrice (Marcadon, Herve et Zaoui [54]). L'inclusion (ainsi que la couronne l'entourant dans le cas des inclusions composites) sont considérées simplement une phase et il est donc impossible d'associer à cette phase aucune propriété particulière permettant de rendre compte d'effets liés à une distribution de tailles d'inclusions, d'épaisseur de couche ou de distance entre objets. Comme on va le voir dans la suite de ce chapitre, certains effets de taille peuvent être pris en compte dans le cadre des approches par motifs. L'approche par motifs repose sur la notion de motif morphologique représentatif (Stolz et Zaoui [78]). Elle est bien adaptée pour modéliser les matériaux à renforts bien que ses applications soient plus générales. Cette approche est une généralisation de l'Assemblage de sphères composites (ASC) de Hashin (Hashin [42]). Cette approche peut être généralisée en considérant plusieurs ensembles de domaines composites identiques (les motifs).

Bornert et al. [12] ont montré qu'il est possible d'obtenir de nouvelles bornes et estimations des propriétés élastiques effectives d'un matériau composite aléatoire à partir d'informations statistiques sur la distribution spatiale des motifs. Les motifs, qui jouent le rôle de « phases morphologiques », permettant de représenter particules ou domaines, avec leurs propres attributs spécifiques, tels que leur taille. Dans cette approche, la relation de localisation est déterminée en insérant un motif isolé dans un matériau de référence. Une possibilité simple est de considérer des motifs constitués

d'une inclusion ellipsoïdale entourée d'une couche dont la surface extérieure est également constituée d'une surface ellipsoïdale, le tout étant inséré dans un matériau homogène de référence (voir la Fig. 3.1).

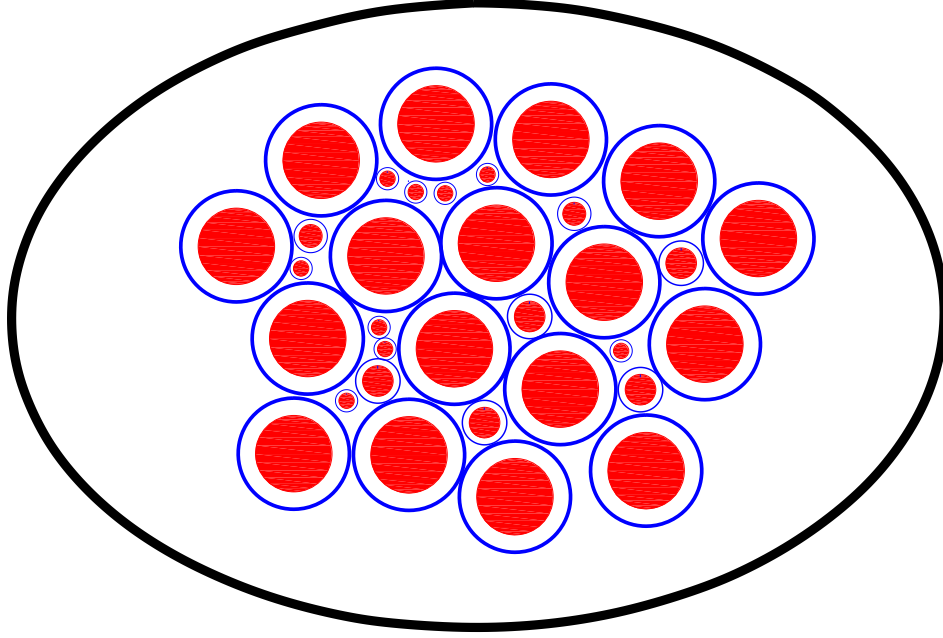


FIG. 3.1 – Un motif morphologique généralisant l'assemblage de sphères composites de Hashin

La forme et l'orientation de l'inclusion permettant de rendre compte des propriétés (forme et orientation) des constituants du matériau étudié tandis que la forme et l'orientation de la surface extérieure du motif permet de rendre compte de la distribution des inhomogénéités au sein du matériau. Enfin, les propriétés du matériau de référence sont choisies de façons à rendre compte de l'existence ou non d'une phase matricielle (voir Bornert [10] pour un exposé détaillé de ces questions). Toutefois, cette approche est également incapable de prendre en compte l'effet de l'empilement maximal (le seuil de rigidité de contact) des motifs (ou inclusions) : il est considéré que la fraction volumique maximale des motifs (ou inclusions) est égal à un alors qu'il est bien connu qu'une telle valeur ne peut être atteinte que pour des distributions de taille d'inclusion particulière. Par exemple, cette valeur est égale à 0.57 pour des sphères monodisperses en distribution isotrope dans un fluide à seuil (Mahaut et al. [52]) et à 0.605 pour une distribution anisotrope (Ovarlez et al. [68]) comme mentionné dans le chapitre 2.

C'est la raison pour laquelle Marcadon et al. [54] ont généralisé l'approche par motifs originale en introduisant un deuxième motif de matrice pure. Néanmoins, ce modèle est uniquement valable pour le cas du matériau composite élastique de particules monodisperses sphériques distribuées de façon isotrope dans une matrice élastique comme mentionné par les auteurs. En fait, les prédictions du modèle proposé par Marcadon et al. [54] s'écartent des résultats expérimentaux obtenus par Vu, Ovarlez et Chateau [88] pour le cas des particules indéformables sphériques bidisperses distribuées de manière isotrope dans un fluide à seuil et s'écartent des données expérimentales obtenues par Weidenmann et al. [90] pour les matériaux composites à particules bidisperses de diamant dans une matrice de métal. Cet écart vient du fait que ce schéma ne permet pas de rendre compte de certaines interactions géométriques entre particules quand ces dernières ne sont pas de mêmes tailles et notamment dans le cas où le rapport de taille des particules n'est pas suffisamment grand (supérieur à dix).

L'objectif principal de ce chapitre est d'étendre le travail de Marcadon et al. [54] au cas de la distribution polydisperse de particules pour estimer les modules effectifs du composite à particules à partir des propriétés mécaniques des phases, des fractions volumiques, de la distribution spatiale des particules et des interactions entre particules. Toutes les particules sont considérées comme ne s'intersectant pas, distribuées de manière aléatoire et isotrope et insérées dans la matrice avec des interfaces parfaites. Dans la section suivante, nous présentons les principes généraux et notations relatives aux matériaux multiphasés aléatoires.

## 3.2 Homogénéisation des milieux élastiques hétérogènes

### 3.2.1 Notion de VER et de grandeurs moyennes

Le volume élémentaire représentatif (VER) du matériau hétérogène considéré est un élément de volume qui, en un point matériel, est statistiquement représentatif des propriétés du matériau (composition, morphologie, ...). Le VER doit être donc suffisamment petit par rapport au volume de l'échantillon ou de la structure qui le contient pour pouvoir être considéré comme un point matériel de la théorie des

milieux continus et suffisamment grand par rapport à la taille caractéristique des hétérogénéités qu'il contient.

L'objectif général des approches micro-macro est de définir un milieu homogène équivalent ayant les mêmes propriétés mécaniques macroscopiques que le milieu hétérogène. De manière générale, les grandeurs moyennes de contrainte et de déformation sont définies de la façon suivante :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle = \frac{1}{|\Omega|} \int_{\Omega} \boldsymbol{\sigma} d\Omega \quad \text{et} \quad \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \frac{1}{|\Omega|} \int_{\Omega} \boldsymbol{\varepsilon} d\Omega, \quad (3.1)$$

où  $\boldsymbol{\sigma}$  et  $\boldsymbol{\varepsilon}$  désignent respectivement le tenseur local de contrainte et le tenseur local de déformation dans le domaine  $\Omega$  occupé par le VER. Dans le cas de *la sollicitation en déformation* définie par la condition en déplacement imposé :  $\underline{\xi}^d = \mathbf{E}.\underline{x}$  sur  $\partial\Omega$  avec  $\mathbf{E}$  le tenseur des déformations macroscopique, on montre que la déformation moyenne est égale à la déformation macroscopique imposée :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \frac{1}{|\Omega|} \int_{\Omega} \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) d\Omega = \mathbf{E}. \quad (3.2)$$

La relation  $\boldsymbol{\Sigma} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle$  permet de définir le lien entre contraintes macroscopique et microscopique.

### 3.2.2 Homogénéisation

Soit  $\Omega$  un VER d'un matériau hétérogène, dont les constituants ont un comportement connu. L'objectif de ce paragraphe est de déterminer de façon formelle les propriétés effectives (macroscopiques) du matériau constituant  $\Omega$ . En fait, on distingue classiquement deux étapes pour un matériau parfaitement connu : l'étape de localisation (résolution du problème hétérogène) et l'étape d'homogénéisation (calcul des grandeurs moyennes à partir des solutions microscopiques). La phase de localisation a pour objectif de déterminer les champs locaux de contrainte ou de déformation à partir de la connaissance des propriétés des constituants et de la microstructure. La dernière phase consiste à déterminer les contraintes et déformations macroscopiques en calculant les moyennes volumiques de leur contrepartie microscopique. Les propriétés effectives (homogénéisées) peuvent être obtenues en identifiant la loi de comportement macroscopique qui relie la contrainte macroscopique et la déformation macroscopique (ou vice versa). Il est à noter que toute la difficulté se situe dans



la phase de localisation car nous devons résoudre des problèmes aux limites posés sur des systèmes hétérogènes. On présente dans la suite l'approche en déformation classiquement utilisée en homogénéisation des milieux aléatoires.

### 3.2.2.1 Approche en déformation

Le problème à résoudre à l'échelle microscopique dans le cas d'une sollicitation en déformation appliquée à un VER de matériau élastique linéaire hétérogène s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \mathbb{C}(\underline{x}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) & : (\Omega) \\ \text{div} \boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \underline{0} & : (\Omega) \\ \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) = \frac{1}{2}(\nabla \underline{\xi} + {}^T \nabla \underline{\xi}) & : (\Omega) \\ \underline{\xi}(\underline{x}) = \mathbf{E} \cdot \underline{x} & : (\partial\Omega) \end{array} \right. \quad (3.3)$$

avec  $\underline{\xi}(\underline{x})$  le champ de déplacement,  $\mathbb{C}(\underline{x})$  le tenseur d'élasticité dans le domaine  $\Omega$  et  $\nabla$  l'opérateur gradient par rapport à la variable d'espace microscopique. Ce problème est linéaire et admet donc une unique solution. Le champ de déformation  $\boldsymbol{\varepsilon}$  associé au champ de déplacement dépend linéairement de la déformation macroscopique  $\mathbf{E}$  appliquée. On a donc :

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) = \mathbb{A}(\underline{x}) : \mathbf{E}, \quad (3.4)$$

où  $\mathbb{A}$  est un tenseur du quatrième ordre, appelé tenseur de localisation en déformation. En utilisant la relation (3.2), on montre facilement :

$$\langle \mathbb{A} \rangle = \mathbb{I}, \quad (3.5)$$

avec  $\mathbb{I}$ , le tenseur identité du quatrième ordre. En supposant que l'on connaît la valeur du tenseur de localisation en déformation et en reportant l'équation (3.4) dans la première relation (3.3), on obtient la loi de comportement homogénéisée élastique linéaire caractérisée par le tenseur des modules d'élasticité macroscopique  $\mathbb{C}^{hom}$  :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle = \mathbb{C}^{hom} : \mathbf{E} \quad \text{avec} \quad \mathbb{C}^{hom} = \langle \mathbb{C} : \mathbb{A} \rangle. \quad (3.6)$$

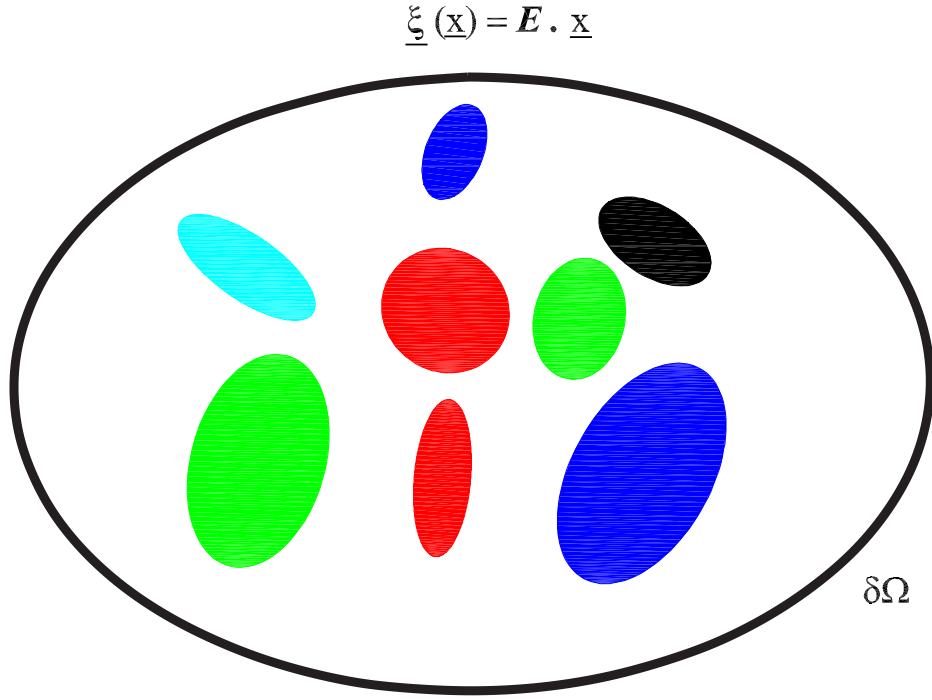


FIG. 3.2 – Conditions homogènes au contour

### 3.2.2.2 Lemme de Hill-Mandel

Un champ de contrainte  $\underline{\sigma}(\underline{x})$  est *statiquement admissible* (SA) si  $\underline{\sigma}(\underline{x})$ , satisfait aux équations d'équilibre sans force volumique :

$$\text{div } \underline{\sigma}(\underline{x}) = \underline{0} \quad (\forall \underline{x} \in \Omega) \quad (3.7)$$

De façon similaire, le champ de déformation  $\underline{\varepsilon}(\underline{x})$  est *cinématiquement admissible* (CA) avec  $\underline{E}$  si  $\underline{\varepsilon}(\underline{x})$  dérive d'un champ de déplacement  $\underline{\xi}(\underline{x})$  CA qui est compatible avec le vecteur de déplacement  $\underline{\xi}$  imposé sur  $\partial\Omega$  :

$$\underline{\varepsilon}(\underline{x}) = \frac{1}{2}(\nabla \underline{\xi} + {}^T \nabla \underline{\xi}) \quad (\forall \underline{x} \in \Omega) \quad (3.8)$$

et

$$\underline{\xi}(\underline{x}) = \underline{E} \cdot \underline{x} \quad (\forall \underline{x} \in \partial\Omega) \quad (3.9)$$

Pour tout champ de contrainte  $\boldsymbol{\sigma}(\underline{x})$  SA et pour tout champ de déformation  $\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})$  CA avec  $\mathbf{E}$ , on a propriété :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} : \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle : \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \boldsymbol{\Sigma} : \mathbf{E} \quad (3.10)$$

Le lemme de Hill-Mandel est valable quelque soit la loi de comportement du matériau constituant  $\Omega$ . La contrainte  $\boldsymbol{\sigma}(\underline{x})$  et la déformation  $\boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x})$  ne sont pas nécessairement la solution du problème.

### 3.2.3 Formulation variationnelle

Les approches variationnelles du comportement effectif d'un matériau hétérogène se basent sur des caractérisations énergétiques ou fonctionnelles de la solution du problème de localisation posé sur le VER. Pour l'approche en déformation, on montre (Bornert [10]) que le comportement homogénéisé est également défini par la solution du problème de minimisation :

$$2W(\mathbf{E}) = \min_{\boldsymbol{\varepsilon} \in K(\mathbf{E})} \langle \boldsymbol{\varepsilon} : \mathbb{C} : \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = - \min_{\boldsymbol{\sigma} \in S} \langle \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{S} : \boldsymbol{\sigma} - 2\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{E} \rangle \quad (3.11)$$

avec  $\mathbb{S} = \mathbb{C}^{-1}$ ,  $K$ , l'espace des champs de déformation CA avec  $\mathbf{E}$ , défini par :

$$K(\mathbf{E}) = \left\{ \boldsymbol{\varepsilon}, \exists \underline{\xi} \text{ vérifiant } \boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{2}(\nabla \underline{\xi} + {}^T \nabla \underline{\xi}) \text{ dans } \Omega \text{ et } \underline{\xi}(\underline{x}) = \mathbf{E} \cdot \underline{x} \text{ sur } \partial\Omega \right\} \quad (3.12)$$

et  $S$ , l'espace des champs de contrainte SA défini par :

$$S = \left\{ \boldsymbol{\sigma} \text{ tel que } \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = 0 \text{ dans } \Omega \right\} \quad (3.13)$$

La loi de comportement à l'échelle macroscopique s'écrit alors :

$$\boldsymbol{\Sigma} = \frac{\partial W}{\partial \boldsymbol{\Sigma}}(\mathbf{E}) \quad (3.14)$$

L'équivalence entre les deux approches se traduisant par l'égalité :

$$W(\mathbf{E}) = \frac{1}{2} \mathbf{E} : \mathbb{C}^{hom} : \mathbf{E} \quad (3.15)$$

La formulation variationnelle (3.15) montre que le tenseur  $\mathbb{C}^{hom}$  est symétrique et défini positif. De façon similaire, l'approche en contrainte repose sur les formulations duales pour l'énergie complémentaire. A partir de ces formulations et en utilisant

des champs d'essais uniformes sur le VER, il est possible d'obtenir les bornes de Voigt et de Reuss (Zaoui [93]). Ces bornes ne dépendent que des caractéristiques des différents matériaux constitutifs du VER et de la fraction volumique de chacune des phases.

Si on peut avoir plus d'informations complémentaires sur la morphologie du VER, il est possible d'obtenir les bornes plus serrées en utilisant des champs d'essais plus élaborés (Hashin et Shtrikman [43]).

### 3.2.4 Bornes de Voigt et de Reuss

L'approximation de Voigt est obtenue en considérant un champs de déformation uniforme au sein du domaine  $\Omega$ . On pose :

$$\mathbb{C}^V = \langle \mathbb{C} \rangle \quad (3.16)$$

En choisissant un champ de déplacement cinématiquement admissible  $\underline{\xi}(\underline{x}) = \mathbf{E}^0 \cdot \underline{x}$  associé à un champ de déformation uniforme et en utilisant la propriété variationnelle (3.11) et la loi macroscopique (3.15), on en déduit :

$$\mathbf{E}^0 : \mathbb{C}^{hom} : \mathbf{E}^0 \leq \mathbf{E}^0 : \mathbb{C}^V : \mathbf{E}^0 \quad (3.17)$$

pour tout  $\mathbf{E}^0$  symétrique. Le tenseur de rigidité de Voigt est donc une estimation par excès du tenseur des modules effectifs (Bornert [10]). Ensuite, la substitution du champ de contrainte uniforme (donc SA)  $\boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \boldsymbol{\Sigma}^0$  dans (3.11) nous conduit à :

$$2\mathbf{E}^0 : \boldsymbol{\Sigma}^0 - \boldsymbol{\Sigma}^0 : \langle \mathbb{S} \rangle : \boldsymbol{\Sigma}^0 \leq \mathbf{E}^0 : \mathbb{C}^{hom} : \mathbf{E}^0 \quad (3.18)$$

pour tout  $\boldsymbol{\Sigma}^0$  et  $\mathbf{E}^0$ . Pour  $\mathbf{E}^0$  fixé, le champ de contrainte  $\boldsymbol{\Sigma}^0$  est choisi de telle sorte que le membre gauche de (3.18) soit maximal. On trouve que :

$$\boldsymbol{\Sigma}^0 = \langle \mathbb{S}(\underline{x}) \rangle^{-1} : \mathbf{E}^0 \quad (3.19)$$

Enfin, la combinaison de (3.19), (3.18) et (3.17) nous ramène à :

$$\mathbf{E}^0 : \mathbb{C}^R : \mathbf{E}^0 \leq \mathbf{E}^0 : \mathbb{C}^{hom} : \mathbf{E}^0 \leq \mathbf{E}^0 : \mathbb{C}^V : \mathbf{E}^0 \quad (3.20)$$

pour tout  $\mathbf{E}^0$ , où  $\mathbb{C}^R$  désigne le tenseur de rigidité de Reuss défini par :

$$\mathbb{C}^R = \langle \mathbb{S}(\underline{x}) \rangle^{-1} \quad (3.21)$$

On pose :

$$\mathbb{S}^R = \langle \mathbb{S} \rangle \quad (3.22)$$

et le tenseur de souplesses de Reuss  $\mathbb{S}^R$  est une estimation par excès du tenseur des souplesses effectives :

$$\Sigma^0 : \mathbb{S}^{hom} : \Sigma^0 \leq \Sigma^0 : \mathbb{S}^R : \Sigma^0 \quad (3.23)$$

pour tout  $\Sigma^0$  symétrique. On introduit également le tenseur des souplesses de Voigt  $\mathbb{S}^V$  défini par :

$$\mathbb{S}^V = \langle \mathbb{C}(\underline{x}) \rangle^{-1} \quad (3.24)$$

Pour la simplicité, les inégalités de Voigt et de Reuss s'écrivent sous la forme :

$$\mathbb{C}^R \leq \mathbb{C}^{hom} \leq \mathbb{C}^V ; \quad \mathbb{S}^V \leq \mathbb{S}^{hom} \leq \mathbb{S}^R \quad (3.25)$$

Considérons le cas particulier où le domaine  $\Omega$  est constitué de  $n$  phases homogènes. Notons  $\Omega_\alpha$  le domaine occupé par la phase  $\alpha$  de la fraction volumique  $f_\alpha$ .  $\mathbb{C}^\alpha$  et  $\mathbb{S}^\alpha$  sont respectivement les tenseurs de rigidité et de souplesse de la phase  $\alpha$ . Dans ce cas, les tenseurs de rigidité et de souplesse relatifs aux estimations de Voigt et de Reuss s'écrivent :

$$\mathbb{S}^V = \left( \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{C}_\alpha \right)^{-1} ; \mathbb{S}^R = \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{S}_\alpha ; \mathbb{C}^R = \left( \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{S}_\alpha \right)^{-1} ; \mathbb{C}^V = \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{C}_\alpha \quad (3.26)$$

Les inégalités (3.25) devient alors :

$$\left( \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{S}_\alpha \right)^{-1} \leq \mathbb{C}^{hom} \leq \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{C}_\alpha ; \quad \left( \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{C}_\alpha \right)^{-1} \leq \mathbb{S}^{hom} \leq \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mathbb{S}_\alpha \quad (3.27)$$

Dans le cas où les phase sont isotropes, en utilisant la notation de Voigt modifiée (voir chapitre 6 dans Bornert [11]) les tenseurs de rigidité et de souplesse s'écrivent :

$$\mathbb{C}_\alpha = 2\mu_\alpha \mathbb{K} + 3k_\alpha \mathbb{J} \quad \text{et} \quad \mathbb{S}_\alpha = \frac{1}{2\mu_\alpha} \mathbb{K} + \frac{1}{3k_\alpha} \mathbb{J} \quad (3.28)$$

avec  $k_\alpha$  (resp.  $\mu_\alpha$ ) désigne le module de compressibilité (resp. cisaillement) de la phase  $\alpha$ . Dans la formule (3.28), on a posé :

$$\mathbb{I} = \mathbb{K} + \mathbb{J} \quad \text{avec} \quad \mathbb{I}_{ijkl} = \frac{1}{2}(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) \quad \text{et} \quad \mathbb{J}_{ijkl} = \frac{1}{3}\delta_{ij}\delta_{kl} \quad (3.29)$$

L'intérêt de l'emploi des tenseurs du quatrième ordre  $\mathbb{K}$  et  $\mathbb{J}$  est justifié par les relations suivantes :

$$\mathbb{I} : \mathbb{I} = \mathbb{I}, \quad \mathbb{K} : \mathbb{K} = \mathbb{K}, \quad \mathbb{J} : \mathbb{J} = \mathbb{J}, \quad \mathbb{K} : \mathbb{J} = \mathbb{O} = \mathbb{J} : \mathbb{K} \quad (3.30)$$

$$\mathbb{I} : \boldsymbol{\delta} = \boldsymbol{\delta} = \mathbb{J} : \boldsymbol{\delta}, \quad \mathbb{K} : \boldsymbol{\delta} = \mathbf{0}, \quad \boldsymbol{\delta} : \boldsymbol{\delta} = 3 \quad (3.31)$$

$$\mathbb{K} : \mathbf{E} = \mathbf{E}^{dev}, \quad \mathbb{J} : \mathbf{E} = \frac{1}{3}(\text{tr} \mathbf{E})\boldsymbol{\delta}, \quad \mathbf{E}^{dev} : \boldsymbol{\delta} = 0 = \boldsymbol{\delta} : \mathbf{E}^{dev} \quad (3.32)$$

où  $\mathbf{E}^{dev}$  désigne le déviateur d'un tenseur symétrique du second ordre  $\mathbf{E}$ . Il est évident que  $\mathbb{K}$  extrait d'un tenseur du second ordre son déviateur et  $\mathbb{J}$  sa partie sphérique.

Supposons maintenant que le matériau est aussi isotrope à l'échelle macroscopique, alors les bornes de Voigt et de Reuss s'écrivent simplement :

$$\left( \sum_{\alpha=1}^n \frac{f_\alpha}{k_\alpha} \right)^{-1} \leq k^{\text{hom}} \leq \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha k_\alpha; \quad \left( \sum_{\alpha=1}^n \frac{f_\alpha}{\mu_\alpha} \right)^{-1} \leq \mu^{\text{hom}} \leq \sum_{\alpha=1}^n f_\alpha \mu_\alpha \quad (3.33)$$

où  $k^{\text{hom}}$  et  $\mu^{\text{hom}}$  désignent le module de compressibilité effectif et de cisaillement effectif. En appliquant ces bornes pour le cas où le matériau composite formé par les particules indéformables dans un matériau élastique isotrope incompressible, nous obtenons les bornes de Voigt et de Reuss pour le module de cisaillement effectif :

$$\frac{\mu}{1-\phi} \leq \mu^{\text{hom}} \leq +\infty \quad (3.34)$$

où  $\mu$  désigne le module de cisaillement de la matrice et  $\phi$  la fraction volumique en particules. Le matériau étant incompressible à l'échelle macroscopique, on a  $k^{\text{hom}} = +\infty$

### 3.2.5 Bornes de Hashin et Shtrikman

Nous considérons le cas important d'un matériau isotrope à l'échelle macroscopique constitué de deux phases isotropes. Si les modules de compressibilité et de cisail-

ment de ces deux phases,  $k_i$  et  $\mu_i$  ( $i = 1, 2$ ) vérifient les conditions :  $k_2 \leq k_1$  et  $\mu_2 \leq \mu_1$ , nous avons les encadrements bien connus obtenus par Hashin et Shtrikman ([42],[43]) suivants :

$$k_-^{HS} \leq k^{\text{hom}} \leq k_+^{HS}, \quad \mu_-^{HS} \leq \mu^{\text{hom}} \leq \mu_+^{HS} \quad (3.35)$$

où les bornes inférieures et supérieures de Hashin et Shtrikman sont données par :

$$k_-^{HS} = k_2 + \frac{f_1}{\frac{1}{k_1 - k_2} + \frac{3f_2}{3k_2 + 4\mu_2}}, \quad k_+^{HS} = k_1 + \frac{f_2}{\frac{1}{k_2 - k_1} + \frac{3f_1}{3k_1 + 4\mu_1}}, \quad (3.36)$$

$$\mu_-^{HS} = \mu_2 + \frac{f_1}{\frac{1}{\mu_1 - \mu_2} + \frac{6f_2(k_2 + 2\mu_2)}{5\mu_2(3k_2 + 4\mu_2)}}, \quad \mu_+^{HS} = \mu_1 + \frac{f_2}{\frac{1}{\mu_2 - \mu_1} + \frac{6f_1(k_1 + 2\mu_1)}{5\mu_1(3k_1 + 4\mu_1)}}, \quad (3.37)$$

où  $f_i$  désigne la fraction volumique de la phase  $i$ . Ces bornes sont valables quelque soit la microstructure du composite. Ce sont les meilleures bornes possibles si on n'a aucune information supplémentaire sur la microstructure. De manière similaire, pour un matériau composite formé par des particules indéformables suspendues dans une matrice élastique isotrope incompressible, les bornes de Hashin et Shtrikman pour le module de cisaillement effectif s'écrivent :

$$\mu \frac{2 + 3\phi}{2(1 - \phi)} \leq \mu^{\text{hom}} \leq +\infty \quad (3.38)$$

### 3.2.6 Problème d'inclusions

Nous considérons le problème d'Eshelby suivant : soit un milieu infini homogène, de comportement élastique linéaire caractérisé par un tenseur de rigidité  $\mathbb{C}_0$ . Ce milieu est supposé dans son état naturel (c'est-à-dire que la contrainte est nulle en tout point  $\underline{x}$  dans la configuration initiale non changée). A l'intérieur de ce milieu infini, on applique une déformation libre uniforme sur un domaine ellipsoïdale  $I$ . Le reste du massif infini reste non changé (pas de force de volume) et une condition de déplacement nul est imposée à l'infini. Eshelby [36] a montré que la déformation à l'intérieur de cette inclusion  $\boldsymbol{\varepsilon}^I$  est homogène, égale à :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^I = \mathbb{S}^E : \boldsymbol{\varepsilon}^L \quad (3.39)$$

où  $\mathbb{S}^E$  est un tenseur d'ordre quatre, appelé tenseur d'Eshelby qui ne dépend que des modules d'élasticité  $\mathbb{C}^0$  du massif et de la forme de l'inclusion. La solution du problème d'Eshelby est indépendante de la taille du domaine  $I$ . Le tenseur d'Eshelby vérifie les symétries  $\mathbb{S}_{ijkl}^E = \mathbb{S}_{jikl}^E = \mathbb{S}_{ijlk}^E$  mais il n'est pas symétrique :  $\mathbb{S}_{ijkl}^E \neq \mathbb{S}_{klij}^E$ . Ses composantes sont sans dimension. La valeur de  $\mathbb{S}^E$  est donnée dans l'article d'Eshelby [36].

### 3.2.6.1 Polarisation

L'équation de la loi de comportement dans l'inclusion  $\boldsymbol{\sigma} = \mathbb{C}_0 : (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^L)$  peut être réécrite sous la forme :

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbb{C}_0 : \boldsymbol{\varepsilon} + \boldsymbol{\sigma}_p \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{\sigma}_p = -\mathbb{C}_0 : \boldsymbol{\varepsilon}^L \quad (3.40)$$

Le tenseur du second ordre  $\boldsymbol{\sigma}_p$  est appelé tenseur de polarisation. Il est symétrique et a la dimension d'une contrainte. On peut facilement établir la relation entre le tenseur de déformation dans l'inclusion et le tenseur de polarisation :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^I = -\mathbb{P} : \boldsymbol{\sigma}_p \quad \text{avec} \quad \mathbb{P} = \mathbb{S}^E : \mathbb{C}_0^{-1} = \mathbb{S}^E : \mathbb{S}_0 \quad (3.41)$$

où  $\mathbb{S}_0$  est le tenseur de souplesse du milieu. Le tenseur  $\mathbb{P}$ , appelé tenseur de Hill (Bornert [10]) a des propriétés plus intéressantes que le tenseur d'Eshelby. Il a été montré (Bornert [9] ; Walpole [89]) que le tenseur de Hill est symétrique, défini positif et que son inverse est plus grand que le tenseur des modules  $\mathbb{C}_0$  au sens des formes quadratiques associées :

$$\forall \mathbf{a} \neq \mathbf{0} : \quad \mathbf{a} : \mathbb{P}^{-1} : \mathbf{a} > \mathbf{a} : \mathbb{C}_0 : \mathbf{a} > 0 \quad (3.42)$$

### 3.2.6.2 Problème d'Eshelby inhomogène

La solution du problème d'Eshelby peut être utilisée pour aborder le problème de l'hétérogénéité. Nous considérons maintenant un milieu  $\Omega$  infini élastique linéaire homogène de module de rigidité  $\mathbb{C}_0$  dans lequel un domaine borné  $I$  de forme ellipsoïdale est constitué d'un matériau élastique linéaire homogène de module de rigidité  $\mathbb{C}_I$ . L'interface entre l'inclusion et le domaine  $\Omega$  est supposée parfaite. Ce matériau



est soumis à une déformation homogène à l'infini  $\mathbf{E}$ . Ce problème s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \mathbb{C}_0 : \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) \text{ dans } \Omega/I \text{ et } \boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \mathbb{C}_I : \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) \text{ dans } I \\ \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma}(\underline{x}) = \underline{0} \text{ dans } \Omega \\ \boldsymbol{\varepsilon}(\underline{x}) = \frac{1}{2}(\nabla \underline{\xi} + {}^T \nabla \underline{\xi}) \text{ dans } \Omega \\ \underline{\xi}(\underline{x}) = \mathbf{E} \cdot \underline{x} \text{ à l'infini } \partial\Omega \end{array} \right. \quad (3.43)$$

On peut calculer la valeur du champ de déformation solution du problème (3.43) à partir de la solution (3.41) en posant  $\boldsymbol{\sigma}_p = (\mathbb{C}_I - \mathbb{C}_0) : \boldsymbol{\varepsilon}_I$  dans l'inclusion. Le champs de déformation dans l'inclusion du problème (3.43) s'écrit :

$$\boldsymbol{\varepsilon}_I = \mathbf{E} - \mathbb{P} : \boldsymbol{\sigma}_p = \mathbf{E} - \mathbb{P} : (\mathbb{C}_I - \mathbb{C}_0) : \boldsymbol{\varepsilon}_I \quad (3.44)$$

on en déduit :

$$\boldsymbol{\varepsilon}_I = [\mathbb{I} + \mathbb{P} : (\mathbb{C}_I - \mathbb{C}_0)]^{-1} : \mathbf{E} \quad (3.45)$$

### 3.2.6.3 Méthodes d'estimation des modules homogénéisés

L'objet de ce paragraphe est de rappeler comment la relation (3.45) peut être utilisée pour construire des estimations du tenseur d'élasticité effectif pour un milieu hétérogène. Un exposé détaillé des justifications théoriques de ces méthodes d'estimation dépassant largement les objectifs de ce document, nous renvoyons le lecteur intéressé aux ouvrages spéciales comme (Zaoui [92] ; Bornert [10] ; Dormieux [31]). Nous avons vu dans la section (3.2.2) que le calcul des modules homogénéisés nécessitait le calcul de la moyenne par phase du champ des tenseurs de localisation des déformations  $\mathbb{A}(\underline{x})$ . On établit à partir de la relation (3.6) :

$$\mathbb{C}^{\text{hom}} = \langle \mathbb{C} : \mathbb{A} \rangle = \sum_1^n f_r \mathbb{C}_r : \mathbb{A}_r \quad (3.46)$$

avec :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_r = \mathbb{A}_r : \mathbf{E} \quad (3.47)$$

Le calcul des quantités  $\mathbb{A}_r$  étant impossible dans la majorité des situations d'intérêt pratique, il a été proposé d'utiliser la relation (3.45) pour estimer les grandeurs  $\mathbb{A}_r$ . La déformation moyenne  $\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_r$  est estimée par la déformation qui s'établit dans

une inhomogénéité ellipsoïdale  $I_r$ , de forme et d'orientation définies, de module  $\mathbb{C}_r$ . Cette inclusion est supposée entourée d'une matrice homogène infinie de modules de rigidité  $\mathbb{C}^0$  soumise à la déformation uniforme à l'infini  $\mathbf{E}_0$ . Le choix de la valeur de  $\mathbb{C}^0$  est un des éléments permettant d'adapter la méthode d'estimation aux propriétés microstructurales du milieu étudié. Par ailleurs, la solution de ce problème doit satisfaire la condition :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \mathbf{E} \quad \text{ou} \quad \langle \mathbb{A} \rangle = \mathbb{I} \quad (3.48)$$

D'après (3.45), la moyenne de déformation dans la phase  $r$  s'écrit :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_r = [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} : \mathbf{E}_0 \quad (3.49)$$

où  $\mathbb{P}_r^0$  dépend à la fois du choix des modules  $\mathbb{C}^0$  et des caractéristiques géométriques de l'ellipsoïde  $I_r$ . On a alors la relation entre les tenseurs de déformation  $\mathbf{E}_0$  et  $\mathbf{E}$  déduite de (3.48) :

$$\left\langle [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} \right\rangle : \mathbf{E}_0 = \mathbf{E} \quad (3.50)$$

d'où :

$$\mathbf{E}_0 = \left\langle [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} \right\rangle^{-1} : \mathbf{E} \quad (3.51)$$

En combinant l'équation (3.47), l'équation (3.49) et l'équation (3.51), on en déduit l'estimation du tenseur de localisation pour chaque phase :

$$\mathbb{A}_r = [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} : \left\langle [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} \right\rangle^{-1} \quad (3.52)$$

En reportant cette relation dans (3.46), on obtient :

$$\mathbb{C}^{\text{hom}} = \sum_1^n f_r \mathbb{C}_r : [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} : \left\langle [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^0 : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^0)]^{-1} \right\rangle^{-1} \quad (3.53)$$

Nous présentons dans la suite différentes estimations classiques du module d'élasticité d'un composite biphasé (on peut généraliser les résultats obtenus pour les matériaux composites à  $n$  phases sans difficulté).

### 3.2.6.3.1 Schéma dilué

Nous nous intéressons à un matériau composite à particules ellipsoïdales dispersées dans une matrice. On suppose que la fraction volumique en particules est suffisam-

ment faible (de l'ordre quelque pour cent) pour que les particules soient relativement distantes les unes des autres. On peut alors négliger les interactions entre particules. Dans ce cas, on peut considérer que chaque particule est immergée dans un milieu infini soumis à la déformation uniforme à l'infini  $\mathbf{E}$ . En choisissant comme matériau de référence celui de la matrice ( $\mathbb{C}^0 = \mathbb{C}_1$ ) et en considérant que les particules constituent la phase 2 ( $f_2 = \phi$ ), les modules d'élasticité effectifs pour ce matériau sont définis par :

$$\mathbb{C}^{\text{hom}} = \mathbb{C}_1 + \phi(\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1) : [\mathbb{I} + \mathbb{P}_2^1 : (\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1)]^{-1} \quad (3.54)$$

Pour un matériau constitué d'une matrice isotrope et de particules sphériques distribuées de façon isotrope, le comportement macroscopique est isotrope, les modules effectifs  $k^{\text{hom}}$  et  $\mu^{\text{hom}}$  sont donnés par (Zaoui [92]) :

$$k^{\text{hom}} = k_1 + \frac{\phi(k_2 - k_1)}{1 + \frac{\theta_1(k_2 - k_1)}{k_1}} \quad \mu^{\text{hom}} = \mu_1 + \frac{\phi(\mu_2 - \mu_1)}{1 + \frac{\kappa_1(\mu_2 - \mu_1)}{\mu_1}} \quad (3.55)$$

où  $\theta_1$  et  $\kappa_1$  sont donnés par :

$$\theta_1 = \frac{3k_1}{3k_1 + 4\mu_1} \quad \kappa_1 = \frac{6(k_1 + 2\mu_1)}{(5k_1 + 4\mu_1)} \quad (3.56)$$

Pour un matériau composite constitué de particules indéformable ( $k_2 = \mu_2 = +\infty$ ) dans une matrice incompressible ( $k_1 = +\infty$ ), on retrouve l'estimation d'Einstein [35] pour le module de cisaillement effectif :

$$\mu^{\text{hom}} = \mu_1 \left(1 + \frac{5}{2}\phi\right) \quad (3.57)$$

Il convient de bien noter que ce résultat n'est valable que pour les très faibles valeurs de la fraction volumique en particules.

### 3.2.6.3.2 Schéma de Mori-Tanaka

Le schéma de Mori-Tanaka vise à prendre en compte les interactions mécaniques entre inclusions quand la fraction volumique de ces dernières augmente (de l'ordre de dizaine pour cent). Dans cette situation, on choisit toujours pour  $\mathbb{C}^0$  les caractéristiques du matériau constitutif de la matrice, les renforts constituant la phase 2 ( $f_2 = \phi$ ). La différence avec le schéma dilué est que l'inclusion entourée de la matrice ne « voit » pas la déformation macroscopique  $\mathbf{E}$ , mais une déformation moyenne

$\mathbf{E}_0$  dont on peut admettre dans un premier temps qu'il s'agit de la déformation « moyenne » dans la matrice. On a alors :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_1 = \mathbf{E}_0 \quad \text{et} \quad \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_2 = [\mathbb{I} + \mathbb{P}_2^1 : (\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1)]^{-1} : \mathbf{E}_0 \quad (3.58)$$

L'estimation Mori-Tanaka du milieu homogène équivalent est obtenue en remplaçant  $\mathbb{C}^0$  par  $\mathbb{C}_1$  dans la relation (3.53) :

$$\mathbb{C}^{MT} = \left[ (1 - \phi)\mathbb{C}_1 + \phi\mathbb{C}_2 : [\mathbb{I} + \mathbb{P}_2^1 : (\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1)]^{-1} \right] : \left[ (1 - \phi)\mathbb{I} + \phi[\mathbb{I} + \mathbb{P}_2^1 : (\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1)]^{-1} \right]^{-1} \quad (3.59)$$

qui s'écrit encore :

$$\mathbb{C}^{MT} = \mathbb{C}_2 - (1 - \phi)(\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1) : \left[ (1 - \phi)\mathbb{I} + \phi[\mathbb{I} + \mathbb{P}_2^1 : (\mathbb{C}_2 - \mathbb{C}_1)]^{-1} \right]^{-1} \quad (3.60)$$

Pour un matériau composite à particules sphériques distribuées de façon isotrope dans une matrice isotrope, le comportement macroscopique est isotrope. On peut calculer analytiquement les modules effectifs  $k^{\text{hom}}$  et  $\mu^{\text{hom}}$  :

$$k^{MT} = -\frac{4\phi\mu_1k_1 - 4\mu_1k_1 - 3k_2k_1 - 4k_2\phi\mu_1}{3\phi k_1 + 4\mu_1 - 3\phi k_2 + 3k_2} \quad (3.61)$$

$$\mu^{MT} = \mu_2 - \frac{(1 - \phi)(\mu_2 - \mu_1)(9\mu_1k_1 + 8\mu_1^2 + 6k_1\mu_2 + 12\mu_1\mu_2)}{9\mu_1k_1 + 8\mu_1^2 + 6k_1\mu_2 + 12\mu_1\mu_2 - 6\phi(\mu_2 - \mu_1)(k_1 + 2\mu_1)} \quad (3.62)$$

Le module de cisaillement effectif d'un matériau composite à particules indéformables ( $k_2 = \mu_2 = +\infty$ ) dans une matrice incompressible ( $k_1 = +\infty$ ), obtenu à partir de l'estimation (3.62) est défini par :

$$\mu^{MT} = \mu_1 \frac{(2 + 3\phi)}{2(1 - \phi)} \quad (3.63)$$

qui n'est autre que la borne inférieure de Hashin-Shtrikman pour ce matériau.

### 3.2.6.3.3 Schéma autocohérent

Le schéma autocohérent se base sur l'idée que le milieu de référence est le milieu homogène équivalent. En reportant  $\mathbb{C}^0 = \mathbb{C}^{\text{hom}}$  dans l'estimation (3.53), on obtient l'équation implicite pour l'estimation du schéma autocohérent pour les modules

d'élasticité effectifs :

$$\mathbb{C}^{AC} = \mathbb{C}^{\text{hom}}(\mathbb{C}^{AC}) \quad (3.64)$$

qui s'écrit encore :

$$\mathbb{C}^{AC} = \left\langle \mathbb{C}_r : [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^{AC} : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^{AC})]^{-1} \right\rangle : \left\langle [\mathbb{I} + \mathbb{P}_r^{AC} : (\mathbb{C}_r - \mathbb{C}^{AC})]^{-1} \right\rangle^{-1} \quad (3.65)$$

Il a été montré (Bornert [10]) qu'il existe toujours une solution à l'équation (3.64). A titre d'exemple, considérons le cas d'un matériau biphasé isotrope avec des constituants isotropes incompressibles. Le milieu homogène équivalent est alors lui aussi incompressible et isotrope. L'équation autocohérente pour le module de cisaillement effectif devient dans cette situation :

$$\left( \frac{\mu^{AC}}{\mu_1} \right)^2 + \left( \frac{5\phi - 3}{3} - \frac{5\phi - 2}{3} \frac{\mu_2}{\mu_1} \right) \left( \frac{\mu^{AC}}{\mu_1} \right) - \frac{2}{3} \frac{\mu_2}{\mu_1} = 0 \quad (3.66)$$

où  $\phi$  désigne la fraction volumique de la phase 2. La solution positive de l'équation (3.66) donne l'estimation autocohérente pour le module de cisaillement effectif du matériau biphasé incompressible :

$$\mu^{AC} = \frac{1}{2} \left( \frac{5\phi - 2}{3} \mu_2 - \frac{5\phi - 3}{3} \mu_1 + \sqrt{\left( \frac{5\phi - 3}{3} \mu_1 - \frac{5\phi - 2}{3} \mu_2 \right)^2 + \frac{8}{3} \mu_2 \mu_1} \right) \quad (3.67)$$

Lorsque la phase 2 est constituée de particules indéformables ( $\mu_2 \rightarrow +\infty$ ), on obtient l'estimation du module de cisaillement effectif pour ce matériau :

$$\mu^{AC} = \mu_1 \frac{1}{1 - 2.5\phi} \quad (3.68)$$

On constate que l'estimation autocohérente pour le module de cisaillement effectif tend vers l'infini quand la fraction volumique en particules tend vers 0.4. Cette estimation permet de prendre en compte le seuil de rigidité de contact des particules. Cependant la valeur  $\phi_m = 0.4$  n'est pas physiquement acceptable comme valeur du seuil de rigidité de contact pour n'importe quel matériau réel. Les estimations présentées ci-dessus ne permettent donc pas de rendre compte du phénomène de percolation des modules effectifs pour des valeurs du seuil de rigidité de contact différente de 0.4 et de 1.

Comme on va le montrer dans la suite de ce chapitre, l'approche par motifs permet

de proposer des estimations compatibles avec différentes valeurs du seuil de rigidité des milieux à renforts infiniment rigides.

### 3.3 Approche par motifs

Compte tenu du fait que les schémas d'homogénéisation classiques ne permettent pas d'obtenir des estimations satisfaisantes des caractéristiques d'un composite à particules ou pour une suspension de particules dans un fluide, on présente dans cette section une approche par motifs qui utilise la notion de motif morphologique représentatif et qui permet de mieux prendre en compte certains détails de la micro-structure que les méthodes classique. Cette méthode est bien adaptée pour décrire des matériaux à renforts qui nous intéressent.

#### 3.3.1 Motifs classiques

Le milieu hétérogène est décomposé en un ensemble de sous-domaines disjoints qui décrivent la totalité du domaine  $\Omega$ . Un « motif morphologique », ou plus simplement un motif, désigne une famille de telles inclusions hétérogènes. Ces familles sont appelées « Motifs morphologiques représentatifs » (cf. Fig.3.3). Deux motifs  $D_\kappa^i$  et  $D_\kappa^j$  centrés respectivement aux points  $\underline{X}_\kappa^i$  et  $\underline{X}_\kappa^j$  sont classés dans la même famille de motif  $\kappa$  si pour tout  $\underline{x} \in D_\kappa$ , on a  $(\underline{X}_\kappa^i + \underline{x})$  appartient à  $D_\kappa^i$ ,  $(\underline{X}_\kappa^j + \underline{x})$  appartient à  $D_\kappa^j$  et  $\mathbb{C}(\underline{X}_\kappa^i + \underline{x}) = \mathbb{C}(\underline{X}_\kappa^j + \underline{x})$ . Le motif particulier  $D_\kappa$  est alors caractérisé par sa géométrie et par un champ local de tenseur des modules d'élasticité défini sur ce domaine :  $\mathbb{C}_\kappa(\underline{x})$ ,  $\underline{x} \in D_\kappa$ . Pour l'instant, il n'y a pas de restriction sur la géométrie du motif et la forme de la distribution locale des modules. Enfin, le milieu hétérogène est complètement décrit par les propriétés de ses motifs et la distribution des centres des motifs.

Il est utile d'introduire la définition de la « valeur moyenne dans le motif », notée  $f_\kappa^M(\underline{x})$  pour la famille de motif  $\kappa$ , qui se calcule pour le champ  $f(\underline{x})$  défini dans le VER par :

$$f_\kappa^M(\underline{x}) = \frac{1}{N_\kappa} \sum_{i=1}^{N_\kappa} f(\underline{X}_\kappa^i + \underline{x}), \quad \forall \underline{x} \in D_\kappa, \quad \forall \kappa, \quad (3.69)$$

où  $N_\kappa$  désigne le nombre d'éléments du VER identiques au motif  $D_\kappa$ . Le lecteur désirant un exposé plus complet de l'approche par motifs est renvoyé à la publication de Bornert et al. [12].

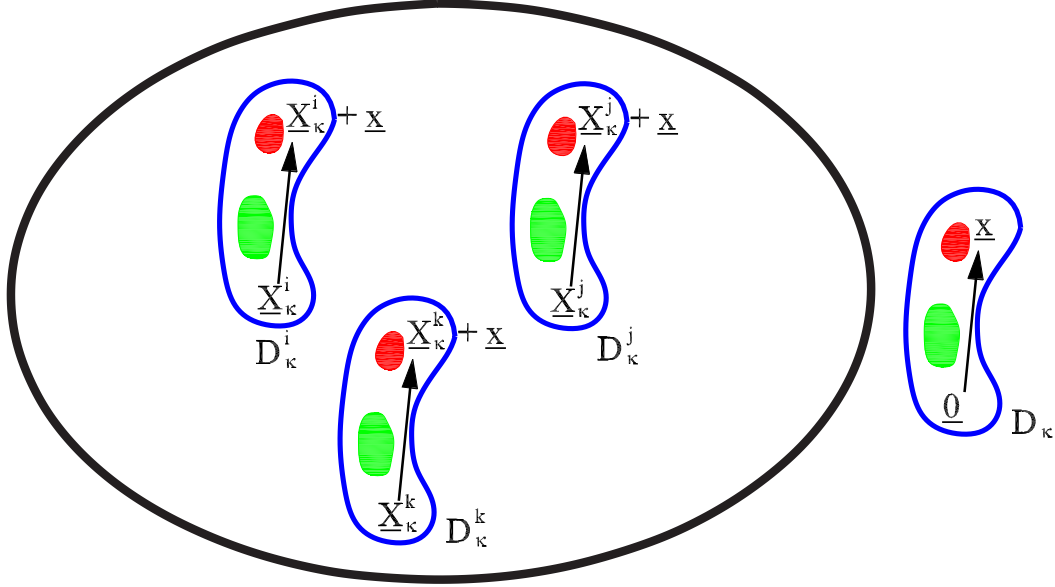


FIG. 3.3 – Motif morphologique représentatif classique

### 3.3.2 Motifs généralisés

Il a été montré (Bornert et al. [12]) que des nouvelles estimations et des bornes plus serrées peuvent être obtenues quand on dispose de plus d'informations sur la géométrie, la distribution spatiale des centres des motifs et leurs propriétés mécaniques. Comme proposé par Bornert et al. [12], chaque motif est caractérisé seulement par sa géométrie spécifique et la distribution locale de ses modules d'élasticité. Par contre, aucune information concernant la taille des objets n'est intégrée dans la notion de motif, mis à part le fait que les motifs doivent être beaucoup plus petits que le VER (hypothèse de macrohomogénéité). Il est donc possible de généraliser le concept original de motifs morphologiques : Le domaine  $\Omega$  peut être décomposé en un ensemble de familles de motif de forme géométrique identique dont les propriétés mécaniques sont supposées connues. Deux motifs  $D_\kappa^i$  et  $D_\kappa^j$  centrés respectivement aux points  $\underline{X}_\kappa^i$  et  $\underline{X}_\kappa^j$  sont classés dans la même famille de motif  $\kappa$  si pour tout  $\underline{x} \in D_\kappa$  tel que  $(\underline{X}_\kappa^i + \underline{x})$  appartient à  $D_\kappa^i$ , il existe un nombre réel positif  $\chi$  tel que  $(\underline{X}_\kappa^j + \chi \underline{x})$  appartient à  $D_\kappa^j$  et  $\mathbb{C}(\underline{X}_\kappa^i + \underline{x}) = \mathbb{C}(\underline{X}_\kappa^j + \chi \underline{x})$ . La quantité  $\chi$  est appelée

rapport d'échelle du motif  $D_\kappa^j$  par rapport au motif  $D_\kappa^i$  (cf. Fig.3.4). Il est alors

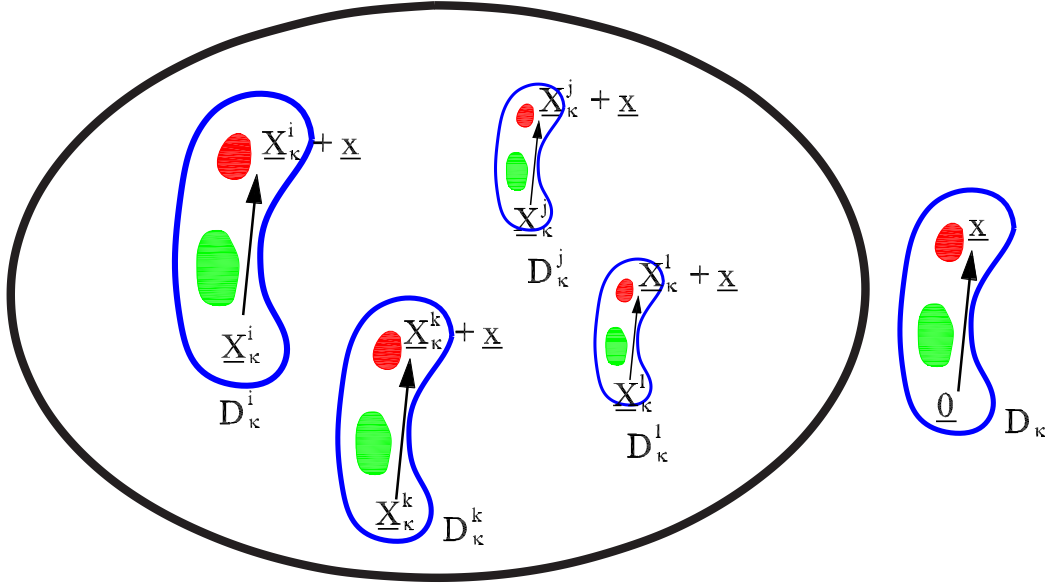


FIG. 3.4 – Motif morphologique représentatif généralisé

nécessaire de redéfinir la définition de la « valeur moyenne dans le motif ». Pour cela, chaque famille  $\kappa$  contenant  $N_\kappa$  motifs, on numérote les membres de 1 à  $N_\kappa$  de façon à ce que les motifs soient triés par taille croissante. Concrètement, pour deux éléments quelconques  $D_\kappa^i$  et  $D_\kappa^j$  de la famille  $\kappa$ , si  $i < j$  on a  $d_{D_\kappa^i} \leq d_{D_\kappa^j}$ , où  $d_{D_\kappa^i}$  désigne la dimension du motif  $D_\kappa^i$  de la famille  $\kappa$ . Pour tout champ  $f(\underline{x})$  dans VER, la « valeur moyenne dans le motif »  $f(\underline{x})$  du motif  $\kappa$  est définie par :

$$f_\kappa^M(\underline{x}) = \frac{1}{N_\kappa} \sum_{i=1}^{N_\kappa} f(\underline{X}_\kappa^i + \chi_\kappa^i \underline{x}), \quad \forall \underline{x} \in D_\kappa, \quad \forall \kappa, \quad (3.70)$$

où  $\chi_\kappa^i$  désigne le rapport d'échelle du motif  $D_\kappa^i$  par rapport au motif  $D_\kappa^1$ . Il est à noter que  $\chi_\kappa^1 = 1$  pour tout  $\kappa$ . Le motif morphologique généralisé devient motif morphologique classique quand  $\chi_\kappa^i = 1$  pour tous  $\kappa$  et  $i$ . Cette nouvelle définition du motif morphologique ne change pas les résultats obtenus dans Bornert et al. [12] car les solutions du champ de déformations et de contraintes locales du problème posé sont obtenues en utilisant l'opérateur de Green associé au milieu infini  $\mathbb{C}^0$  ne dépendent pas des dimensions réelles des motifs.



On considère maintenant le matériau hétérogène formé d'une matrice homogène de module  $\mathbb{C}_1$ . Les motifs sont éventuellement prolongés dans une matrice qui définit le motif 1. Les autres motifs sont numérotés de 2 à  $n$ , avec  $n$  le nombre de motifs. On se restreint aux situations où l'on a une distribution ellipsoïdale des centres de motifs. On suppose qu'on peut calculer pour chacun des motifs immergés dans un milieu homogène infini de module  $\mathbb{C}^0$  soumis à l'infini à la sollicitation  $\mathbf{E}^0$  la moyenne de la contrainte, la moyenne de la déformation et la moyenne de la polarisation grâce aux relations :

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{\kappa}^M = \mathbb{U}_{D_{\kappa}}^0 : \mathbf{E}^0 \quad (3.71)$$

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_{\kappa}^M = \mathbb{V}_{D_{\kappa}}^0 : \mathbf{E}^0 \quad (3.72)$$

$$\langle \boldsymbol{\tau} \rangle_{\kappa}^M = \mathbb{T}_{D_{\kappa}}^0 : \mathbf{E}^0 \quad (3.73)$$

où  $\mathbb{U}_{D_{\kappa}}^0$ ,  $\mathbb{V}_{D_{\kappa}}^0$  et  $\mathbb{T}_{D_{\kappa}}^0$  sont les tenseurs du 4ème ordre. Ces tenseurs peuvent être calculés soit par voie analytique dans quelques cas simples soit par voie numérique dans des cas plus complexes. Ces résultats permettent d'estimer les modules d'élasticité effectifs dans deux situations simples d'intérêt pratique.

### 3.3.2.1 Les motifs sont dispersés dans une matrice

Le matériau de matrice est choisi comme un matériau de référence. Les modules d'élasticité du milieu homogène équivalent sont caractérisés par le tenseur  $\mathbb{C}^{MMT}$  défini par (Bornert [10]) :

$$\mathbb{C}^{MMT} = \mathbb{C}_1 + (\langle \mathbb{T}^1 \rangle_p^{-1} - \mathbb{P}_d^1)^{-1} \quad (3.74)$$

avec

$$\langle \mathbb{T}^1 \rangle_p = \sum_{\kappa=2}^n f_{\kappa} \mathbb{T}_{D_{\kappa}}^0 \quad (3.75)$$

où  $f_{\kappa}$  désigne la fraction volumique du milieu occupé par le motif  $\kappa$ . Dans l'équation (3.74),  $\mathbb{P}_d^1$  désigne le tenseur de Hill associé à l'inclusion caractérisant la distribution des centres des motifs au sein du VER qui a été présenté dans la section (3.2.6.1). Ce tenseur est symétrique et défini positif et dépend de la forme de l'inclusion et des propriétés mécaniques de la matrice. Le tenseur de Hill est relié au tenseur d'influence de Hill par la relation :

$$\mathbb{P} = \mathbb{C}^* + \mathbb{C}_1 \quad (3.76)$$

Cette approche généralise le schéma de Mori-Tanaka pour le cas d'inclusions hétérogènes. Cependant l'estimation (3.74) pour les modules d'élasticité effectifs n'est pas toujours valable parce qu'on ne peut pas toujours inverser le tenseur  $\langle \mathbb{T}^1 \rangle_p$  défini par la relation (3.75).

### 3.3.2.2 Schéma autocohérent généralisé

Dans le cas où le matériau de référence n'est pas le matériau de la matrice, le comportement effectif du milieu hétérogène est défini par la relation (Bornert [10]) :

$$\mathbb{C}^{MHS} = \left( \sum_{\kappa=1}^n f_{\kappa} \mathbb{U}_{D_{\kappa}}^0 \right) : \left( \sum_{\kappa=1}^n f_{\kappa} \mathbb{V}_{D_{\kappa}}^0 \right)^{-1} \quad (3.77)$$

Cette estimation n'est valable que si tous les motifs sont de forme ellipsoïdale de rapport de forme et d'orientation identique à celui définissant la distribution des centres des motifs. En fait, l'estimation du schéma autocohérent généralisé est la solution de l'équation implicite :

$$\mathbb{C}^{MAC} = \mathbb{C}^{MHS}(\mathbb{C}^{MAC}) \quad (3.78)$$

qui peut être résolue itérativement par la méthode du point fixe. On considère par la suite la situation où la distribution des centres des motifs est isotrope pour les applications pratiques présentées ci-dessous. Dans cette situation, les motifs doivent tous occuper des domaines sphériques. Dans la section qui suit, nous présentons les différents schémas permettant de prendre en compte certaines propriétés de la microstructure du matériau hétérogène liées à la distribution de taille des objets.

## 3.4 Seuil de percolation et effet de la polydispersité

Dans le chapitre 2, on a montré que les propriétés rhéologiques d'une suspension dépendent fortement à la granulométrie des granulats dispersés au sein du fluide. La similitude entre le problème solide et le problème liquide (voir chapitre 1) permet de conclure que les propriétés mécaniques d'un composite à particules dépendent aussi de la granulométrie des granulats. L'effet de la distribution de taille des particules est aussi étudié pour les matériaux composites solides. Récemment, Weidenmann et al. [90] ont étudié la rigidité d'un composite contenant une forte concentration de particules bidisperses de diamant dans une matrice de métal (la fraction volu-

mique en particules de diamant varie entre 0.55 et 0.75). Ils ont comparé les données expérimentales avec les prédictions du schéma classique de Mori-Tanaka (Mori et Tanaka [59]), du modèle à trois phase (Christensen et Lo [20]) et du schéma différentiel (Norris et al. [64]). L'écart entre les données expérimentales et les prédictions théoriques de ces schémas reste importante. De façon cohérente avec les résultats et commentaires détaillés dans ce chapitre, nous pensons que l'impossibilité de bien représenter les résultats expérimentaux par les prédictions des schémas de Mori-Tanaka, à trois phases et différentiel s'explique par le fait que ces trois schémas sont incapables de prendre en compte l'effet de la distribution de taille des inclusions. Les travaux cités ci-dessous et dans l'introduction du chapitre 2 montrent que le rôle de l'empilement et de la distribution de tailles des particules ne peut être négligé ni pour les matériaux fluides, ni pour les matériaux solides.

### 3.4.1 Schéma à un motif - Assemblage de sphères composites de Hashin

La notion de « matériau composite à particules » signifie qu'il y a systématiquement une certaine couche d'épaisseur non nulle de matrice autour de chaque renfort. On considère ici que toutes les particules de modules  $\mathbb{C}_2$  sont entourées par une couche d'épaisseur non nulle de matrice de module d'élasticité  $\mathbb{C}_1$ . Cette épaisseur est supposée égale à la moitié de la distance minimale entre bords de particules voisines (Bornert [10]). Deux motifs sont dits similaires si leurs noyaux sont constitués d'une même phase, si leurs couches extérieures sont composées d'une autre même phase et s'ils sont géométriquement homothétiques. Ces motifs sont supposés remplir entièrement le volume occupé par le matériau grâce à une construction fractale aléatoire dans laquelle les motifs plus petits occupent l'espace laissé entre les motifs plus grands (voir Fig. 3.5). On note  $x = a/b$  le rapport entre le rayon de la particule et le rayon de la couche extérieure et  $\phi = x^3$  la fraction volumique occupée par la particule au sein du motif. Chaque motif est immergé dans un milieu infini homogène fictif de module d'élasticité  $\mathbb{C}^0$  soumis à l'infini un chargement en déformation homogène  $\mathbf{E}^0$ .

Ce schéma morphologique à un motif n'est autre que l'assemblage de sphères composites de Hashin (ASC). L'estimation pour les modules effectifs peut être obtenue grâce à la solution du « problème élémentaire » obtenue par Hervé et Zaoui [44] (voir annexe (3.6.1)). A titre d'exemple, quand on choisit comme milieu de référence celui

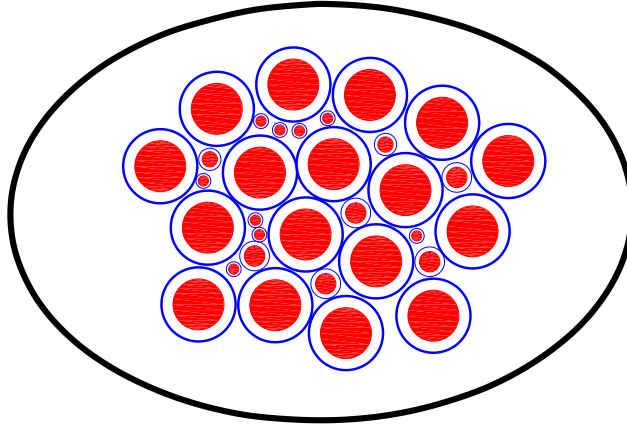


FIG. 3.5 – Assemblage de sphères composites de Hashin

de la matrice, on retrouve bien l'estimation de Mori-Tanaka pour les modules effectifs  $k^{MT}$  et  $\mu^{MT}$  :

$$k^{MT} = -\frac{3k_1k_2 + 4k_1\mu_1 + 4\phi\mu_1k_2 - 4\phi k_1\mu_1}{-3k_2 - 4\mu_1 + 3\phi k_2 - 3\phi k_1} \quad (3.79)$$

et

$$\mu^{MT} = \mu_2 - \frac{(1-\phi)(\mu_2 - \mu_1)(9\mu_1k_1 + 8\mu_1^2 + 6k_1\mu_2 + 12\mu_1\mu_2)}{9\mu_1k_1 + 8\mu_1^2 + 6k_1\mu_2 + 12\mu_1\mu_2 - 6\phi(\mu_2 - \mu_1)(k_1 + 2\mu_1)} \quad (3.80)$$

identiques aux estimations (3.61) et (3.62). On rappelle que cette estimation est valable pour les faibles valeurs de la fraction volumiques en particules (de l'ordre de la dizaine de pour cent).

On s'intéresse maintenant au schéma autocohérent obtenu en choisissant comme matériau fictif de référence le matériau homogène équivalent :  $\mathbb{C}^0 = \mathbb{C}^{\text{hom}}$ . En résolvant l'équation implicite (3.78), le module de compressibilité effectif  $k^{\text{hom}}$  est donné par :

$$k^{\text{hom}} = k_1 + \phi(k_2 - k_1) \left( 1 + \frac{(1-\phi)(k_2 - k_1)}{k_1 + 4/3\mu_1} \right)^{-1} \quad (3.81)$$

et le module de cisaillement effectif est la solution positive réelle de l'équation du second degré en  $\mu^{\text{hom}}$  (ou  $X = \mu^{\text{hom}}/\mu_1$ ) :

$$AX^2 + 2BX + C = 0 \quad (3.82)$$

où  $A$ ,  $B$  et  $C$  dépendent de  $\mu_1$ ,  $\mu_2$ ,  $\phi$  et des coefficients de Poisson  $\nu_1$  et  $\nu_2$ . Les expressions pour  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont données dans l'annexe (3.6.1). On retrouve bien les solutions (après correction) de Christensen et Lo [20] pour l'assemblage de sphères composites de Hashin. Dans le cas où la phase 2 est indéformable et la matrice est incompressible, l'estimation autocohérente pour le module de cisaillement effectif diverge pour  $\phi$  tend vers 1. Cette estimation est donc pertinente pour une suspension de particules où toutes les particules sont entourées d'une couche de fluide de viscosité  $\mu$  d'épaisseur proportionnelle au rayon de la particule et à la fraction volumique occupée par la phase solide au sein de la suspension. Elle ne peut donc être appliquée qu'à une suspension de particules dont la répartition granulométrique correspond à un empilement apollonien de sphères.

### 3.4.2 Schéma à deux motifs pour le cas des particules monodisperses

Il a été montré dans Marcadon, Hervé et Zaoui [54] que l'approche par motifs morphologiques peut être utilisée pour étudier l'influence de la distance entre particules sur les propriétés macroscopiques du composite de particules de même rayon  $R_{inc}$  distribuées de manière isotrope dans une matrice élastique isotrope tandis que les approches d'homogénéisation classiques citées dans l'introduction ne peuvent pas tenir compte de cet effet. Ces approches d'homogénéisation classiques ne permettent pas non plus de prendre en compte de l'existence d'un seuil de rigidité de contact pour des valeurs de  $\phi_m$  différentes de 0.4 et de 1.

Marcadon, Hervé et Zaoui [54] ont proposé un schéma à deux motifs permettant de rendre compte du phénomène de blocage du seuil de rigidité de contact pour la valeur de  $\phi_m$  différent de 1. Le premier motif hétérogène est constitué d'une particule de rayon  $a$  de module d'élasticité  $\mathbb{C}_2$  entourée d'une coque de rayon extérieur  $b$  constituée d'un matériau élastique isotrope de matrice  $\mathbb{C}_1$ . Au sein de ce motif, les particules occupent la fraction volumique  $c = (a/b)^3$  et on note  $x = a/b$ . Le deuxième motif est constitué d'une sphère homogène de matrice élastique linéaire isotrope de module  $\mathbb{C}_1$ . Le deuxième motif représente la matrice coincée quand le premier motif n'occupe pas totalité le domaine du VER. L'effet de l'empilement est représenté par la valeur de  $\phi_m$  qui est la fraction volumique du premier motif au sein du VER et le deuxième motif représente le complément du premier motif. On en déduit facilement la fraction volumique en particules du VER :  $\phi = c \times \phi_m$ .

L'estimation pour les modules d'élasticité du composite peut être obtenue d'après les résultats de l'approche par motifs présentée dans la section (3.3.2.2) pour le schéma à deux motifs en utilisant la solution du problème auxiliaire « problème élémentaire » pour une sphère composite immergée dans une matrice homogène infini obtenue par Hervé et Zaoui [44] (voir annexe (3.6.1)) pour le premier motif et la solution du problème d'Eshelby inhomogène pour le deuxième motif. Dans ces deux cas, les motifs sont immergés dans une matrice fictive infinie constitué du matériau homogène équivalent (MHE) avec le chargement en déformation uniforme à l'infini  $\mathbf{E}^0$  qui peut être déterminé par la condition  $\langle \mathbf{E}^0 \rangle = \mathbf{E}$  (voir Fig. 3.6).

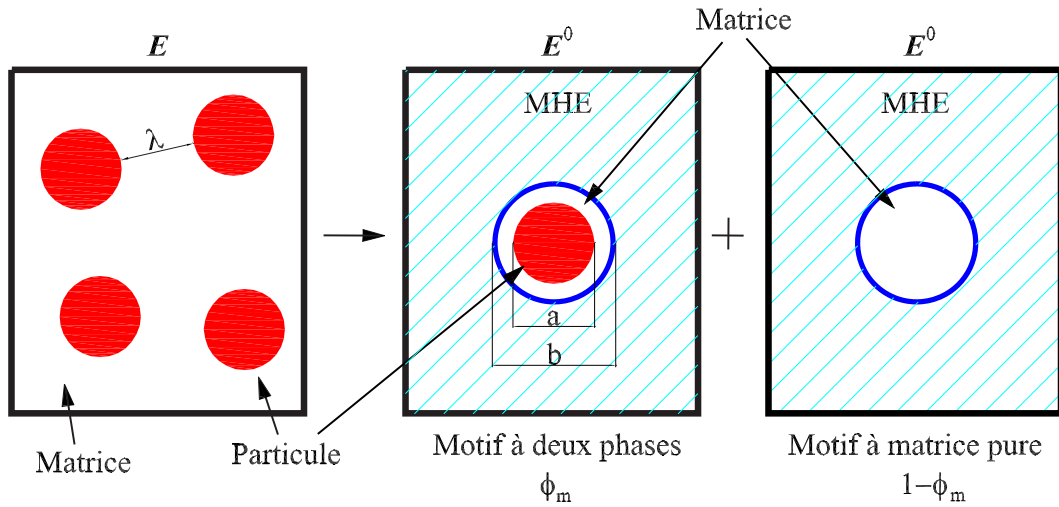


FIG. 3.6 – Effet de l'empilement modélisé par le schéma à deux motifs

Pour la valeur limite  $\phi_m = 1$ , on retrouve les résultats du modèle de l'assemblage de sphères composites de Hashin. Ce schéma est aussi abordé et validé expérimentalement dans Luu [50] pour étudier le comportement rhéologique d'une suspension de particules monodisperse dans un fluide à seuil en utilisant les résultats expérimentaux pour le module élastique obtenus par Mahaut [52]. Dans cette situation, la valeur du seuil de rigidité de contact est égale à 0.57.

Il a été montré que le schéma proposé par Marcadon, Hervé et Zaoui [54] est capable de prendre en compte certains paramètres géométriques liés à l'empilement des particules. Ce schéma décrit bien le comportement d'un composite à particules

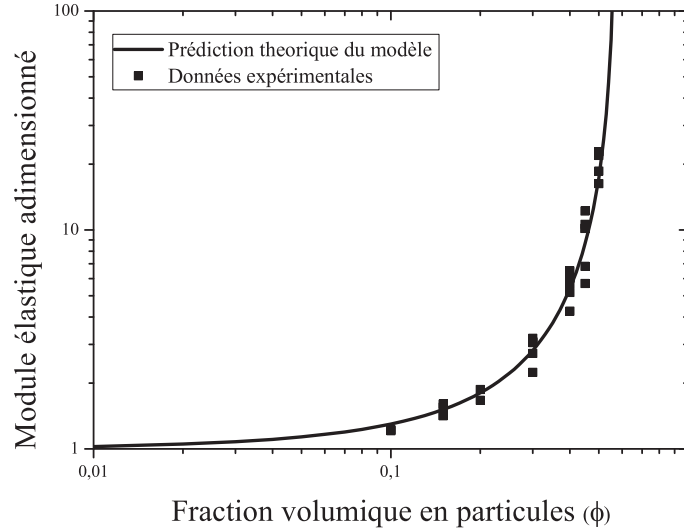


FIG. 3.7 – Comparaison entre la prédiction théorique du schéma à deux motifs classique et les données expérimentales du module élastique obtenus par Mahaut [52]. Le seuil de rigidité de contact  $\phi_m$  est égal à 0.57.

monodisperse et a été validé dans le cas des particules sphériques monodisperses dispersées de façon isotrope dans une matrice élastique incompressible linéaire isotrope. Cependant, la comparaison entre les estimations théoriques de ce modèle avec les données expérimentales obtenues par Weidenmann et al. [90] pour des particules bidisperses de diamant dans une matrice métallique et les données expérimentales obtenues par Vu, Ovarlez et Chateau [88] pour des particules indéformables bidisperses suspendues dans une matrice élastique incompressible linéaire isotrope montre que ce schéma n'est pas valable dans le cas polydisperse. En fait, quand on fitte la prédiction du modèle avec les données expérimentales pour le module élastique dans le but d'identifier la valeur du seuil de rigidité de contact, on trouve dans quelques cas que cette valeur est supérieure à un ce qui n'est pas acceptable d'un point de vue physique.

Le fait que ce schéma ne puisse pas prédire correctement le comportement d'un matériau contenant deux tailles de particules n'est pas étonnant dans la mesure où la prise en compte d'un unique motif revient à supposer que toutes les particules « voient » la même épaisseur de fluide ou de matrice. Or, on conçoit aisément que pour

une dispersion polydisperse, les particules sont entourées de couche de fluide (ou de matrice) d'épaisseur différente (voir Fig. (3.8)). Au paragraphe suivant, on propose de prendre en compte cette hétérogénéité des épaisseurs de matrice en considérant plusieurs (deux en fait) motifs hétérogènes.

### 3.4.3 Schéma à deux motifs généralisé pour le cas général

Il a été noté dans la section précédente que le schéma à deux motifs classique n'est plus valable dans le cas d'une distribution bidisperse de particules. La raison pour laquelle ce schéma n'est plus valable est qu'il ne permet pas prendre en compte certaines interactions géométriques entre particules quand ces dernières sont de tailles différentes. On propose de mettre en œuvre un schéma à deux motifs et trois phases pour prendre en compte de telles interactions. Pour cela, on considère deux motifs : le premier motif est constitué une particule de modules d'élasticité  $\mathbb{C}_2$  entourée d'une coque concentrique de module d'élasticité celui de la matrice  $\mathbb{C}_1$ . L'épaisseur de la coque dépend de la densité de l'empilement des granulats. Le motif résiduel proposé par Marcadon, Hervé et Zaoui [54] est remplacé par un deuxième motif constitué d'une particule de module  $\mathbb{C}_2$  entourée d'une coque de module  $\mathbb{C}_1$  dont l'épaisseur est différente de celle du premier motif (voir Fig.3.8). Selon l'approche par motifs morphologiques, l'estimation pour les modules d'élasticité effectifs est obtenue grâce aux solutions de deux « problèmes élémentaires » auxiliaires pour une sphère composite immergée dans une matrice infinie homogène de module  $\mathbb{C}^0$  (annexe (3.6.1)). Dans ces deux cas, le milieu fictif infini de référence possède les propriétés du milieu homogène équivalent comme pour le schéma à deux motifs classique.

L'interprétation physique du schéma à deux motifs généralisé pour le cas polydisperse est que le deuxième motif de ce schéma représente l'influence de la polydispersité : il est bien connu que la valeur du seuil de rigidité de contact du mélange polydisperse est plus grande que celle du mélange monodisperse. Pour le mélange monodisperse, quand la fraction volumique en particules atteint la valeur du seuil de rigidité de contact, il est raisonnable de considérer que toutes les particules sont en contact avec au moins une autre particule voisine et que le motif additionnel de la matrice résiduelle représente le domaine supplémentaire au premier motif quand ce dernier ne remplit pas la totalité du VER. Par contre, pour le mélange polydisperse, il peut exister une classe de particules entourées par une coque de matrice même si



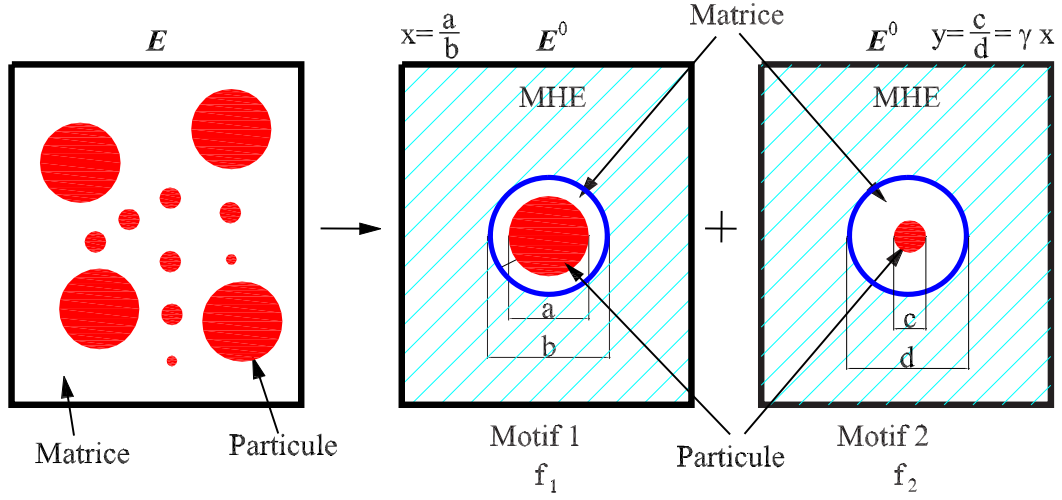


FIG. 3.8 – Effets de la polydispersité et du seuil de rigidité de contact modélisés par le schéma à deux motifs généralisé

la fraction volumique en particules est égale au seuil de rigidité de contact. L'effet de ces particules est pris en compte à l'aide du second motif. Quand la fraction volumique en particules atteint le seuil de rigidité de contact, la couche de matrice du deuxième motif contient la quantité de matrice (ou fluide) saturant le milieu quand la fraction volumique solide est égale à  $\phi_m$ .

On note  $f_1$  (resp.  $f_2$ ) la fraction volumique du premier motif composite (resp. deuxième motif) dans le domaine,  $\phi_1$  (resp.  $\phi_2$ ) la fraction volumique en particules dans le premier motif (resp. deuxième motif). On note de nouveau  $x$  le rapport entre le rayon intérieur et le rayon extérieur du premier motif tandis que  $y$  désigne le rapport entre le rayon intérieur et le rayon extérieur du deuxième motif. Quand la fraction volumique totale en particules atteint la valeur du seuil de rigidité de contact,  $x$  est égal à un tandis que  $y$  atteint sa valeur maximale  $\gamma$  qui est toujours plus petite que un. Pour la simplicité du modèle, on impose  $y = \gamma \times x$ . La condition  $f_1 + f_2 = 1$  assure que les motifs décrivent la totalité du domaine composite intéressé, l'effet du seuil de rigidité de contact est pris en compte par la condition  $f_1 + \gamma^3 f_2 = \phi_m$ . Pour résumés, le modèle du schéma à deux motifs généralisé est décrit par les relations suivantes :

$$\begin{cases} f_1 + f_2 = 1 \\ f_1 + \gamma^3 f_2 = \phi_m \\ x^3 = \phi/\phi_m \end{cases} \quad (3.83)$$

Autrement dit, le schéma à deux motifs généralisé est paramétré par trois nombres principaux : la fraction volumique en particules  $\phi$ , la valeur du seuil de rigidité de contact  $\phi_m$  qui représente l'effet de l'empilement et la valeur de  $\gamma$  qui prend en compte l'effet de la polydispersité. Il est évident que les valeurs de  $\phi_m$  et de  $\gamma$  dépendent de la distribution de tailles de particules et de la composition en classes de particules du mélange polydisperse. Un modèle théorique d'empilement permettant de prédire la valeur de  $\phi_m$  a été présenté dans le chapitre 2. La valeur de  $\gamma$  dépend de la valeur du rapport de taille des particules  $\lambda$  et de la proportion volumique en petites particules  $\xi$ . Pour le cas monodisperse, cette valeur est nulle parce qu'il n'y a pas d'interaction géométrique entre particules de même taille. Cela signifie que  $\gamma = 0$  quand  $\xi = 0$ ,  $\xi = 1$  ou  $\lambda = 1$ . En plus, le système (3.83) requiert que  $\gamma^3 \leq \phi_m$  car  $f_1 = (\phi_m - \gamma^3)/(1 - \gamma^3) \geq 0$ . On propose ici une relation empirique pour la valeur du paramètre  $\gamma$  qui sera utilisée dans la suite :

$$\gamma = 2\sqrt{\xi(1-\xi)}(1-\lambda^{-2})^6 \phi_m(\lambda, \xi)^{1/3} \quad (3.84)$$

Bien que cette prédiction ne repose sur aucun argument rigoureux, nous montrons dans la suite, en comparant les prédictions du modèle théorique avec les données expérimentales pour le cas bidisperse dans la littérature, qu'elle permet bien de prédire les caractéristiques de suspensions polydisperses.

Comme la situation considérée ici est mécaniquement et géométriquement isotrope à l'échelle microscopique et macroscopique, le tenseur des modules d'élasticité effectifs est aussi isotrope. Les tenseurs de localisation  $\mathbb{U}_{D_\kappa}^0$ ,  $\mathbb{V}_{D_\kappa}^0$  et  $\mathbb{T}_{D_\kappa}^0$  sont aussi isotropes et peuvent être calculés analytiquement grâce à la solution du « problème élémentaire » (Hervé et Zaoui [44]). En utilisant la notation de Voigt modifiée, ces tenseurs peuvent être décomposés en partie déviatorique et sphérique en utilisant les tenseurs  $\mathbb{K}$  et  $\mathbb{J}$  introduits plus haut :

$$\begin{cases} \mathbb{U}_{D_\kappa}^0 = a_\kappa^0 \mathbb{K} + b_\kappa^0 \mathbb{J} \\ \mathbb{V}_{D_\kappa}^0 = c_\kappa^0 \mathbb{K} + d_\kappa^0 \mathbb{J} \\ \mathbb{T}_{D_\kappa}^0 = r_\kappa^0 \mathbb{K} + s_\kappa^0 \mathbb{J} \end{cases} \quad (3.85)$$

où  $a_\kappa^0$ ,  $b_\kappa^0$ ,  $c_\kappa^0$ ,  $d_\kappa^0$ ,  $r_\kappa^0$  et  $s_\kappa^0$  sont des grandeurs scalaires simples pouvant être calculées

facilement grâce à la solution du « problème élémentaire » pour chaque motif. Le tenseur des modules élastiques est défini par :

$$\mathbb{C}^{hom} = 2\mu^{hom}\mathbb{K} + 3k^{hom}\mathbb{J} \quad (3.86)$$

où  $\mu^{hom}$  et  $k^{hom}$  désignent respectivement le module de cisaillement effectif et le module de compressibilité effectif. En utilisant la décomposition ci-dessus dans l'équation (3.77), on obtient la relation suivante pour le tenseur des modules élastiques effectif :

$$\mathbb{C}^{hom} = \left( \sum_{\kappa=1}^n f_{\kappa} (a_{\kappa}^0 \mathbb{K} + b_{\kappa}^0 \mathbb{J}) \right) : \left( \sum_{\kappa=1}^n f_{\kappa} (c_{\kappa}^0 \mathbb{K} + d_{\kappa}^0 \mathbb{J}) \right)^{-1} \quad (3.87)$$

L'intérêt de l'emploi des tenseurs  $\mathbb{K}$  et  $\mathbb{J}$  nous permet d'obtenir facilement l'expression de  $\mathbb{C}^{hom}$  :

$$\mathbb{C}^{hom} = \sum_{\kappa=1}^2 (f_{\kappa} a_{\kappa}^0 \mathbb{K} + f_{\kappa} b_{\kappa}^0 \mathbb{J}) : \sum_{\kappa=1}^2 \left( \frac{1}{f_{\kappa} c_{\kappa}^0} \mathbb{K} + \frac{1}{f_{\kappa} d_{\kappa}^0} \mathbb{J} \right) \quad (3.88)$$

qui s'écrit encore :

$$\mathbb{C}^{hom} = \frac{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} a_{\kappa}^0}{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} c_{\kappa}^0} \mathbb{K} + \frac{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} b_{\kappa}^0}{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} d_{\kappa}^0} \mathbb{J} \quad (3.89)$$

De la comparaison entre l'équation (3.86) et l'équation (3.89) on déduit le système d'équations définissant les modules effectifs du milieu homogène :

$$k^{hom} = \frac{1}{3} \frac{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} b_{\kappa}^0}{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} d_{\kappa}^0} \quad \text{et} \quad \mu^{hom} = \frac{1}{2} \frac{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} a_{\kappa}^0}{\sum_{\kappa=1}^2 f_{\kappa} c_{\kappa}^0} \quad (3.90)$$

Le choix  $k^0 = k^{hom}$  et  $\mu^0 = \mu^{hom}$  généralise le schéma autocohérent et fait le système (3.90) devient implicite. Il doit donc être résolu itérativement. L'application et la validation expérimentale de ce schéma à deux motifs généralisé sont données dans la section qui suit.

### 3.4.4 Application et validation expérimentale

On présente quelques exemples analytiques et validations expérimentales du schéma à deux motifs généralisé dans cette section pour le matériau composite contenant une forte concentration de particules.

#### 3.4.4.1 Composite à particules indéformables

On considère la situation où le matériau composite est constitué de particules indéformables de taille différente distribuées de façon aléatoire et isotrope dans une matrice incompressible isotrope. Ce schéma peut être utilisé pour prédire la viscosité macroscopique d'une suspension de particules indéformables suspendues dans un fluide newtonien ou pour le module élastique effectif d'une suspension de particules dans un fluide à seuil. De façon plus générale, le module de cisaillement effectif du matériau composite renforcé par les particules rigides peut être obtenu.

Quand des particules indéformables sont immergées dans une matrice incompressible, le matériau homogénéisé est aussi incompressible à l'échelle macroscopique. Le système d'équation (3.90) se réduit alors à une seule équation pour l'inconnue  $\mu^0$ . On s'intéresse à l'estimation autocohérente en imposant  $\mu^0 = \mu^{\text{hom}}$ . Le module de cisaillement effectif s'écrit :  $\mu^{\text{hom}} = X\mu_1$  où  $X$  désigne la solution positive maximale de l'équation du quatrième ordre :

$$a_0 + a_1X + a_2X^2 + a_3X^3 + a_4X^4 = 0 \quad (3.91)$$

où les coefficients  $a_i$  ( $i = 1..4$ ) sont donnés dans annexe (3.6.2). L'équation (3.91) peut être résolue analytiquement en utilisant la méthode de Ferrari (Tignol [83]). Le module de cisaillement effectif  $\mu^{\text{hom}}$  diverge quand  $\phi$  tend vers  $\phi_m$ . Cela signifie que le modèle permet bien de prendre en compte le phénomène de blocage de l'écoulement ou de blocage du réseau de contact des particules qui a lieu par une valeur de  $\phi_m$  qui dépend de la distribution de taille des particules et de la composition du mélange polydisperse. De plus, le développement en série au premier ordre de la solution de l'équation (3.91) pour  $\mu^{\text{hom}}$  par rapport à la variable  $\phi$  donne la relation :

$$\mu^{\text{hom}} = \mu \left( 1 + \frac{5}{2}\phi + 0(\phi^2) \right) \quad (3.92)$$

Cela signifie que pour les faibles valeurs de la fraction volumique en particules, la

prédiction du modèle tend vers la solution analytique d'Einstein (Einstein [35]). La polydispersité n'affecte pas les propriétés macroscopiques du composite pour les faibles valeurs de la concentration en particules.

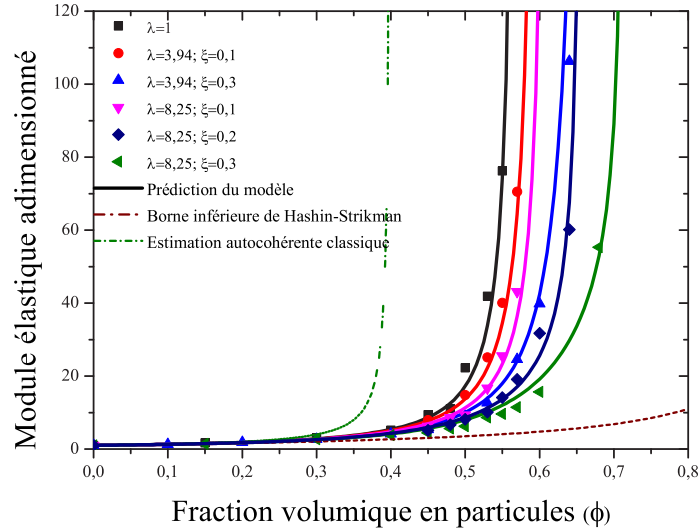


FIG. 3.9 – Module élastique adimensionné en fonction de la fraction volumique en particules pour différents rapports de taille  $\lambda$  et différentes valeurs de la proportion volumique en petites particules  $\xi$  pour les suspensions bidisperses étudiées dans le chapitre 2. Les lignes continues représentent les prédictions théoriques du schéma à deux motifs généralisé. La ligne pointillée en bas représente la borne inférieure de Hashin-Shtrikman et la ligne pointillée en haut représente l'estimation autocohérente classique.

Dans le but de valider le modèle proposé, les prédictions analytiques de ce modèle ont été comparées avec les données expérimentales de Vu, Ovarlez et Chateau [88] présentées dans le chapitre 2 pour la distribution bidisperse de particules distribuées de manière isotrope dans une matrice incompressible. On a tracé sur la Fig. 3.9 l'évolution du module élastique effectif adimensionné en fonction de la fraction volumique en particules pour les données expérimentales présentées dans le chapitre 2, la borne inférieure de Hashin et Shtrikman, l'estimation autocohérente classique pour cette quantité et les prédictions théoriques du schéma à deux motifs généralisé. On observe un très bon accord entre les prédictions du modèle et les données expérimentales.

Dans cette figure, on ne donne que quelques résultats typiques pour une meilleure lisibilité de la figure.

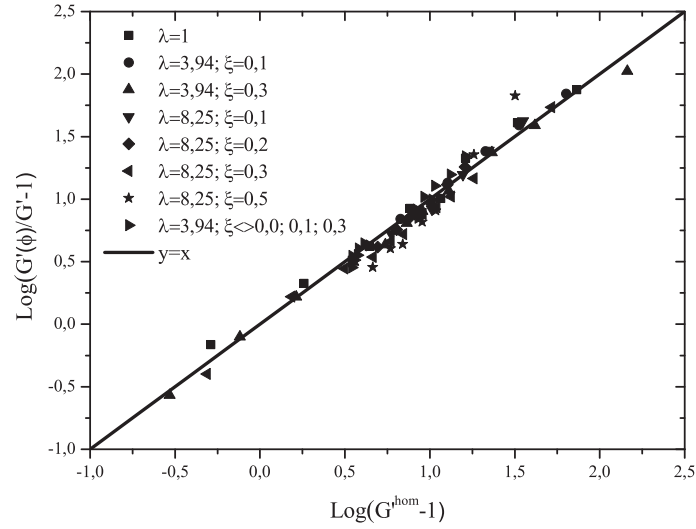


FIG. 3.10 – Module élastique adimensionné  $G'(\phi, \lambda, \xi)/G'$  en fonction de  $G^{hom}/G'$  pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapport de taille  $\lambda$  et toutes proportions volumiques en petites particules  $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne  $y = x$  représente les estimations théoriques. .

Afin de comparer toutes les données expérimentales et les estimations théoriques, on a tracé sur la Fig. 3.10 les modules élastiques adimensionnés  $(G'(\phi, \lambda, \xi)/G' - 1)$  en fonction des estimations théoriques  $(G^{hom}/G' - 1)$  en coordonnées logarithmiques pour toutes les systèmes étudiés. Les valeurs du seuil de rigidité de contact  $\phi_m$  sont calculées grâce au modèle d'empilement présenté dans le chapitre 2 tandis que les valeurs du paramètre de la polydispersité  $\gamma$  sont calculées grâce à la prédiction (3.84).

Au premier regard, on voit que les estimations théoriques représentent de façon très satisfaisante les données expérimentales. Afin d'évaluer quantitativement ce point, nous avons calculé les erreurs par la méthode des moindres carrés de la différence entre les valeurs mesurées et théoriques. On a trouvé une erreur égale à 0.008 pour les estimations des modules élastiques obtenues par le schéma proposé tandis que cette valeur égale à 0.0093 pour les estimations des modules élastiques obtenues par la relation théorique (2.33).

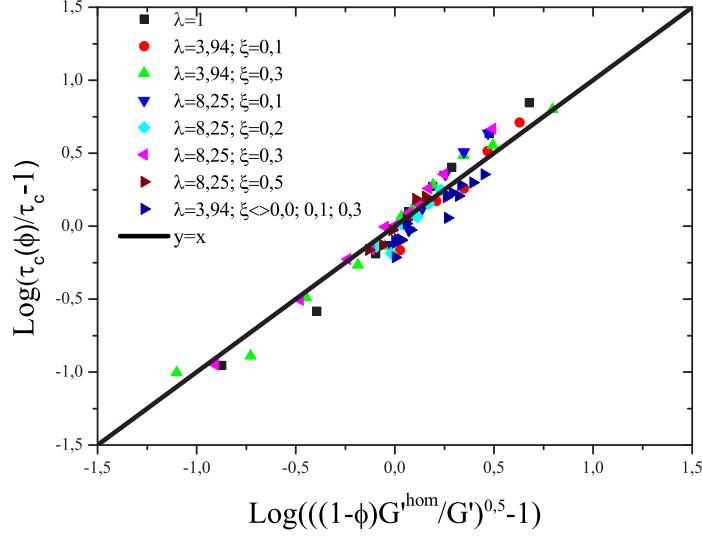


FIG. 3.11 – Seuil de contrainte adimensionné  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  en fonction de  $\tau_c^{hom}/\tau_c$  pour toutes les suspensions bidisperses étudiées (tous rapport de taille  $\lambda$  et toutes proportions volumiques en petites particules  $\xi$ ). Les coordonnées ont été choisies de sorte que la ligne  $y = x$  représente les estimations théoriques.

La combinaison entre la prédiction obtenue par l'approche par motif du module élastique macroscopique pour des suspensions bidisperses et la loi (2.22) obtenu par l'approche d'homogénéisation nonlinéaire nous permet de prédire la valeur du seuil de contrainte de telles suspensions. On a tracé sur la Fig. 3.11 les seuils de contrainte adimensionnés  $\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c$  en fonction des estimations théoriques  $\tau_c^{hom}/\tau_c$  en coordonnées logarithmiques pour toutes les systèmes étudiés. Les valeurs du seuil de rigidité de contact  $\phi_m$  sont calculées grâce au modèle d'empilement présenté dans le chapitre 2 tandis que les valeurs du paramètre de polydispersité  $\gamma$  sont calculées grâce à la relation (3.84). On observe de nouveau un bon accord entre les mesures expérimentales et les prédictions théoriques. Il est à noter que l'estimation du seuil de contrainte des suspensions bidisperses présentée ici est obtenue uniquement au moyen d'une approche d'homogénéisation.

### 3.4.4.2 Validation expérimentale pour le cas général

On présente dans cette section une validation expérimentale du schéma à deux motifs généralisé pour le cas général (c'est à dire, des particules polydisperses déformables distribuées dans une matrice compressible). Pour cela, on compare les prédictions théoriques obtenues par ce modèle avec les données expérimentales obtenues par Weidenmann et al. [90]. Ils ont étudié la contribution mécanique des particules de diamant dans une matrice de métal avec une forte valeur de la fraction volumique en particules de diamant. Pour atteindre des valeurs de la fraction volumique en particules plus grande que 0.6, ils ont utilisé des mélanges de particules de diamant de taille moyenne  $22 \mu\text{m}$  et de taille moyenne  $200 \mu\text{m}$  (rapport de taille de particule  $\lambda = 9.09$ ). Différents mélanges de particules ont été obtenus en variant la valeur de la proportion volumique en petites particules  $\xi$ . Le matériau composite est formulé en utilisant la méthode d'infiltration, la température d'infiltration pour le composite dont la matrice est constituée d'aluminium est égale à  $800^\circ\text{C}$  tandis que celle pour la matrice à base d'argent, cette température est ajustée à  $1000^\circ\text{C}$ .

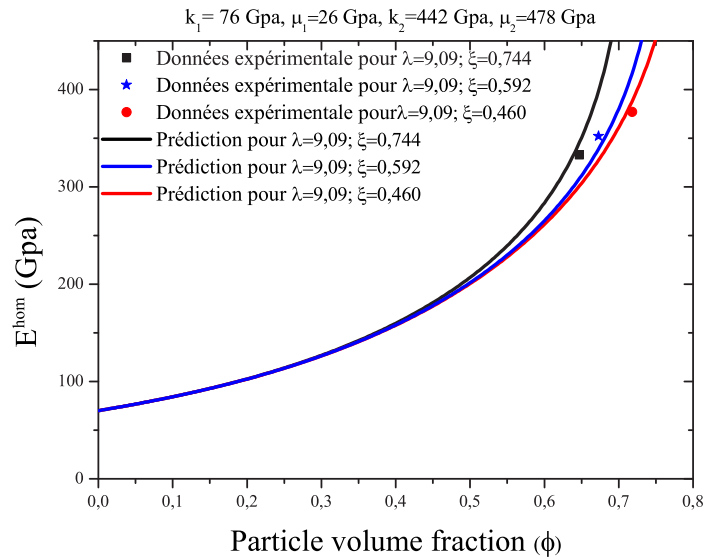


FIG. 3.12 – Module d'Young effectif  $E^{\text{hom}}$  en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$  pour le cas d'une matrice en aluminium.

Les propriétés mécaniques de ces deux types de matériau composite sont : module de



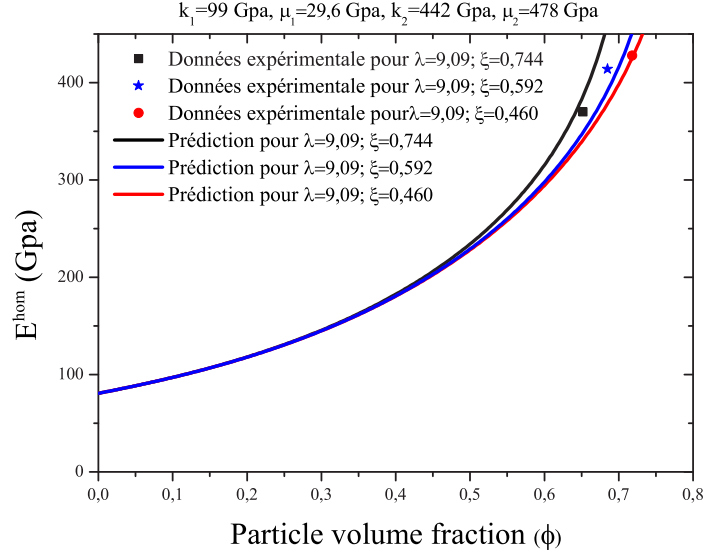


FIG. 3.13 – Module d'Young effectif  $E^{\text{hom}}$  en fonction de la fraction volumique en particules  $\phi$  pour le cas l'argent est le matériau de la matrice.

compressibilité et de cisaillement de la matrice à base d'aluminium  $k^{\text{al}} = 76.0$  GPa, et  $\mu^{\text{al}} = 26$  GPa. Pour la matrice de base d'argent, le module de compressibilité  $k^{\text{ag}}$  est égal à 99 GPa et le module de cisaillement  $\mu^{\text{ag}}$  est égal à 29.6 GPa. Le module de compressibilité des particules de diamant  $k^{\text{dia}}$  est égal à 442 GPa et son module de cisaillement  $\mu^{\text{dia}}$  est égal à 478 GPa. Le lecteur désirant un exposé plus complet de la procédure d'expérimentale et de l'analyse des résultats est renvoyé à la publication de Weidenmann et al. [90]. La Fig. 3.12 et Fig. 3.13 présentent la comparaison entre les prédictions pour le module d'Young effectif du modèle à deux motifs généralisé avec les données expérimentales pour différentes valeurs de la fraction volumique en particules et pour différents mélanges. Le module d'Young effectif peut être facilement calculé en utilisant la relation suivante :

$$E^{\text{hom}} = \frac{9k^{\text{hom}}\mu^{\text{hom}}}{3k^{\text{hom}} + \mu^{\text{hom}}} \quad (3.93)$$

où  $k^{\text{hom}}$  et  $\mu^{\text{hom}}$  peuvent être obtenus en résolvant numériquement le système d'équation (3.90). On constate un bon accord entre données expérimentales et estimations théoriques. Comme pour le cas précédent, on calcule l'erreur par la méthode des

moindres carrés. On trouve une erreur égale à 0.0014 pour tous les matériaux étudiés. Ce résultat est tout à fait satisfaisant compte tenu du fait qu'il est probable que les propriétés mécaniques sont mesurées sur des matériaux qui ne satisfont pas entièrement aux hypothèses formulées pour obtenir les estimations théoriques (forme sphérique des particules, isotropie et homogénéité notamment). Même si on n'a pas beaucoup de points expérimentaux dans ce cas, cette comparaison nous confirme que les estimations construites par le modèle à deux motifs généralisé sont plus pertinentes que celles obtenues par les autres modèles classiques, particulièrement pour les fortes valeurs des fractions volumiques en particules et pour la distribution polydisperse en particules.

### 3.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons développé une approche par changement d'échelle pour étudier le comportement macroscopique d'un matériau composite à particules. Pour cela, nous avons présenté les principales caractéristiques des méthodes d'homogénéisation permettant d'obtenir une caractérisation homogène équivalente du comportement d'un matériau hétérogène. Nous avons ensuite tout d'abord montré que les estimations classiques ne permettent pas de prédire les propriétés macroscopiques d'un composite ou d'une suspension de particules dans toutes les situations d'intérêt pratique.

En nous basant sur l'approche par motifs morphologiques, un nouveau schéma et des nouvelles estimations micromécanique ont été proposées pour prédire les modules effectifs d'un composite de particules bidisperses distribuées dans une matrice élastique. Ce nouveau schéma permet de prendre en compte l'effet de la polydispersité des particules pour mieux décrire la microstructure du matériau étudié. Nous avons retrouvé des modèles micromécaniques classiques dans certains cas limites comme par exemple le modèle à trois phases ou le schéma à deux motifs classique de l'approche par motifs morphologiques.

Le modèle à deux motifs généralisé a été validé expérimentalement en utilisant les données expérimentales présentées dans le chapitre 2 dans le cas où le matériau composite est constitué de particules indéformables dans une matrice incompressible. Ce modèle a également été validé dans le cas général en comparant avec les données expérimentale de Weidenmann et al. [90]. Le bon accord entre les estimations

théoriques obtenues par l'approche par motifs morphologiques et les données expérimentales nous a permis de valider les hypothèses utilisées.

Il est à noter que cette approche peut être étendue pour le cas de fibres cylindriques infinies ou pour le cas isotrope transverse. Dans le chapitre suivant, l'approche par motifs morphologique sera présentée dans le but de modéliser la transition de phase liquide-solide d'une suspension colloïdale thixotrope.

## 3.6 Annexe A

### 3.6.1 Problème élémentaire : inclusion sphérique inhomogène

La solution du problème de localisation du composite sphérique à deux phases (dénommé « problème élémentaire » dans ce chapitre) est présentée ici un composite sphérique contenant une particule sphérique de rayon  $a$  de module de cisaillement  $\mu_2$  et de compressibilité  $k_2$  entourée d'une coque de rayon  $b$  de module de cisaillement  $\mu_1$  et de compressibilité  $k_1$ . Cet inclusion composite est immergée dans un milieu infini homogène de module de cisaillement  $\mu_0$  et de compressibilité  $k_0$  soumis à l'infini une déformation uniforme macroscopique  $\mathbf{E}^0$  (voir Fig. 3.14). Selon Hervé et

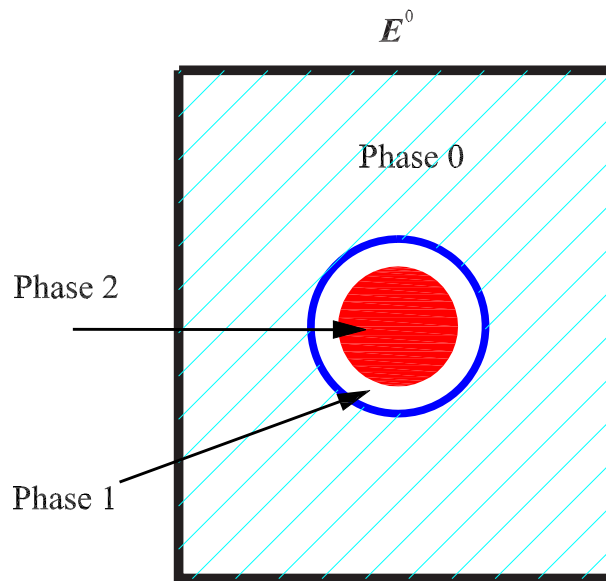


FIG. 3.14 – Problème élémentaire.

Zaoui [44], la condition de la dilatation uniforme et de la déformation déviatorique  $\mathbf{e}^0$  à peuvent être prescrites séparément l'infini.

- Pour le premier cas, la dilatation  $\theta_1$  dans la coque,  $\theta_2$  dans la particule et  $\theta_0$  dans la matrice ont été montrées uniformes et ses valeurs sont données par :

$$\begin{cases} \theta_1 = \frac{(3k_0 + 4\mu_0)(3k_2 + 4\mu_1)}{(3k_1 + 4\mu_0)(3k_2 + 4\mu_1) + 12y^3(\mu_0 - \mu_1)(k_1 - k_2)} \theta_0 \\ \theta_2 = \frac{(3k_0 + 4\mu_0)(3k_1 + 4\mu_1)}{(3k_1 + 4\mu_0)(3k_2 + 4\mu_1) + 12y^3(\mu_0 - \mu_1)(k_1 - k_2)} \theta_0 \end{cases} \quad (3.94)$$

La partie déviatorique du champ de déformation est disparue dans la particule ainsi que dans la coque.

- Pour le deuxième cas, la moyenne de la dilatation est nulle dans la particule et dans la coque et la moyenne de la partie déviatorique du champ de déformation  $\mathbf{e}_1$  et  $\mathbf{e}_2$  sont données par :

$$\begin{cases} \mathbf{e}_1 = 15 \frac{(1-\nu_0)X_0 \left( (X_0-1) \left( A+60y^3(1-\nu_1)(\eta_1 y^7 - \eta_2(7-10\nu_1)) \right) + 35(1-\nu_1)\eta_2\eta_3(1-y^3) \right)}{(1-y^3)\Delta} \mathbf{e}_0 \\ \mathbf{e}_2 = 225 \frac{(1-\nu_0)(1-\nu_1)X_0 \left( -4(X_0-1)(\eta_1 y^7 - \eta_2(7-10\nu_1)) + 35\eta_2(1-\nu_1) \right)}{\Delta} \mathbf{e}_0 \end{cases} \quad (3.95)$$

où  $\nu_i$  désigne le coefficient de Poisson de la phase  $i$ ,  $i \in [0, 1, 2]$  et :

$$\left\{ \begin{array}{l} y = \frac{a}{b} \\ A = -4(\eta_3 - 2\alpha(4 - 5\nu_1)y^3)(\eta_1 y^7 - \eta_2(7 - 10\nu_1)) - 126\alpha\eta_2 y^3(1 - y^2)^2 \\ C = -(\eta_3 + \alpha(7 - 5\nu_1)y^3)(4\eta_1 y^7 + \eta_2(7 + 5\nu_1)) - 126\alpha\eta_2 y^3(1 - y^2)^2 \\ B = -1/2 C - 1/2 A - \frac{525}{2}\alpha\eta_2(1 - \nu_1)^2 y^3 \\ X_0 = \frac{\mu_0}{\mu_1} \\ \eta_1 = (49 - 50\nu_1\nu_2)\alpha + 35(1 + \alpha)(\nu_2 - 2\nu_1) + 70\nu_2 - 35\nu_1 \\ \eta_2 = (7 + 5\nu_2)(1 + \alpha) + 28 - 40\nu_2 \\ \eta_3 = 2(1 + \alpha)(4 - 5\nu_1) + 7 - 5\nu_1 \\ \alpha = \frac{\mu_2}{\mu_1} - 1 \\ \Delta = (2(4 - 5\nu_0)C + (7 - 5\nu_0)AX_0)(X_0 - 1) + \dots \\ \dots 525\eta_2(1 - \nu_1)(2\alpha(\nu_1 - \nu_0)y^3 + (1 - \nu_0)\eta_3)X_0 \end{array} \right. \quad (3.96)$$

### 3.6.2 Coefficient de l'équation (3.91)

Les coefficients de l'équation (3.91) :

$$\begin{aligned}
 a_0 = & -1444 - 1444\gamma - 8550\gamma x^3 - 10800\gamma^{12}x^{13} - 2304\gamma^{10}x^{20} - 7600x^7 \\
 & - 8550x^3 - 50625\gamma^5x^6 - 45000\gamma^9x^{10} + 75600\gamma^4x^8 - 9600\gamma^{12}x^{17} \\
 & - 2304\gamma^{11}x^{20} - 7600\gamma^9x^7 + 12768\gamma^6x^5 - 40000\gamma^8x^{14} - 1824\gamma^2x^{10} \\
 & - 1824\gamma^{11}x^{10} - 7600\gamma^8x^7 - 7600\gamma^7x^7 - 45000\gamma^4x^{10} - 2304\gamma^{12}x^{20} \\
 & + 75600\gamma^7x^8 - 10800\gamma^{10}x^{13} + 67200\gamma^6x^{12} - 7600\gamma x^7 - 112896\gamma^6x^{10} \\
 & + 67200\gamma^8x^{12} - 45000\gamma^3x^{10} + 75600\gamma^6x^8 - 1824\gamma^{10}x^{10} - 8550\gamma^3x^3 \\
 & - 9600\gamma^{10}x^{17} - 45000\gamma^8x^{10} + 12768\gamma^5x^5 + 75600\gamma^3x^8 - 50625\gamma^3x^6 \\
 & - 10800\gamma^3x^{13} - 50625\gamma^4x^6 - 1824x^{10} + 12768x^5 + 16128\gamma^{10}x^{15} \\
 & + 67200\gamma^5x^{12} - 157896\gamma^5x^{10} + 151200\gamma^5x^8 - 7600\gamma^2x^7 + 16128\gamma^5x^{15} \\
 & - 1444\gamma^2 + 12768\gamma^2x^5 - 157896\gamma^7x^{10} - 8550\gamma^4x^3 + 16128\gamma^{11}x^{15} \\
 & + 134400\gamma^7x^{12} + 16128\gamma^7x^{15} - 9600\gamma^9x^{17} - 9600\gamma^{11}x^{17} - 1824\gamma^{12}x^{10} \\
 & - 40000\gamma^9x^{14} + 16128\gamma^6x^{15} + 12768\gamma^7x^5 + 12768\gamma x^5 - 9600\gamma^8x^{17} \\
 & - 40000\gamma^7x^{14} - 9600\gamma^7x^{17} - 8550\gamma^2x^3 + 67200\gamma^9x^{12} - 10800\gamma^{11}x^{13} \\
 & - 10800\gamma^4x^{13} + 16128\gamma^{12}x^{15} - 1824\gamma x^{10} - 8550\gamma^5x^3 - 10800\gamma^5x^{13}
 \end{aligned} \tag{3.97}$$

$$\begin{aligned}
a_1 = & -3154 - 3154\gamma + 33600\gamma^8x^{13} + 33600\gamma^6x^{13} - 67200\gamma^8x^{15} \\
& -67200\gamma^9x^{15} - 1500\gamma x^3 + 33600\gamma^{12}x^{13} - 40000\gamma^8fx^{17} - 33600\gamma^8fx^{13} \\
& +67200\gamma^8fx^{15} - 33600\gamma^7fx^{13} + 67200\gamma^7fx^{15} + 39900\gamma^6fx^{10} \\
& -7600\gamma^9fx^{10} - 40000\gamma^9fx^{17} - 33600\gamma^9fx^{13} + 67200\gamma^9fx^{15} \\
& -7600\gamma^8fx^{10} + 39900fx^{10}\gamma^5 - 33600fx^{13}\gamma^3 \\
& +67200fx^{15}\gamma^5 - 7600fx^{10}\gamma^7 - 79800fx^8\gamma^3 \\
& +5376\gamma^{10}x^{20} - 7600\gamma^2fx^{10} - 9025\gamma^2fx^3 - 7600\gamma fx^{10} - 9025\gamma fx^3 \\
& +39900fx^{10}\gamma^3 - 40000fx^{17}\gamma^7 - 33600\gamma^6fx^{13} + 67200\gamma^6fx^{15} \\
& -33600\gamma^5fx^{13} + 39900\gamma^4fx^{10} - 33600\gamma^4fx^{13} - 79800\gamma^4fx^8 - 2600x^7 \\
& -1500x^3 + 39375\gamma^5x^6 + 35100\gamma^9x^{10} - 46200\gamma^4x^8 + 38400\gamma^{12}x^{17} \\
& +5376\gamma^{11}x^{20} - 2600\gamma^9x^7 + 4368\gamma^6x^5 + 60000\gamma^8x^{14} + 3936\gamma^2x^{10} \\
& +3936\gamma^{11}x^{10} - 2600\gamma^8x^7 - 2600\gamma^7x^7 + 35100\gamma^4x^{10} + 5376\gamma^{12}x^{20} \\
& -46200\gamma^7x^8 + 33600\gamma^{10}x^{13} - 100800\gamma^6x^{12} - 2600\gamma x^7 + 129444\gamma^6x^{10} \\
& -100800\gamma^8x^{12} + 35100\gamma^3x^{10} - 46200\gamma^6x^8 + 3936\gamma^{10}x^{10} - 1500\gamma^3x^3 \\
& +38400\gamma^{10}x^{17} + 35100\gamma^8x^{10} + 4368\gamma^5x^5 - 46200\gamma^3x^8 + 39375\gamma^3x^6 \\
& +33600\gamma^3x^{13} + 39375\gamma^4x^6 + 3936x^{10} + 4368x^5 - 64512\gamma^{10}x^{15} \\
& -100800\gamma^5x^{12} + 204444\gamma^5x^{10} - 172200\gamma^5x^8 - 2600\gamma^2x^7 - 64512\gamma^5x^{15} \\
& -3154\gamma^2 + 4368\gamma^2x^5 + 204444\gamma^7x^{10} - 1500\gamma^4x^3 - 64512\gamma^{11}x^{15} \\
& -201600\gamma^7x^{12} - 64512\gamma^7x^{15} + 38400\gamma^9x^{17} + 38400\gamma^{11}x^{17} + 3936\gamma^{12}x^{10} \\
& +60000\gamma^9x^{14} - 64512\gamma^6x^{15} + 4368\gamma^7x^5 + 4368\gamma x^5 + 38400\gamma^8x^{17} \\
& +60000\gamma^7x^{14} + 38400\gamma^7x^{17} - 1500\gamma^2x^3 - 100800\gamma^9x^{12} \\
& +33600\gamma^{11}x^{13} + 33600\gamma^4x^{13} - 64512\gamma^{12}x^{15} + 3936\gamma x^{10} - 1500\gamma^5x^3 \\
& +33600\gamma^5x^{13} + 33600\gamma^7x^{13} - 7600fx^{10} - 9025fx^3 + 33600\gamma^9x^{13}
\end{aligned} \tag{3.98}$$

$$\begin{aligned}
a_2 = & -74 - 74\gamma - 67200\gamma^8x^{13} - 67200\gamma^6x^{13} + 134400\gamma^8x^{15} \\
& + 134400\gamma^9x^{15} + 19050\gamma x^3 - 44400\gamma^{12}x^{13} + 80000\gamma^8fx^{17} \\
& + 67200\gamma^8fx^{13} + 1200fx^{10}\gamma^7 - 30912x^5 \\
& - 134400\gamma^8fx^{15} + 67200\gamma^7fx^{13} - 134400\gamma^7fx^{15} - 6300\gamma^6fx^{10} \\
& + 1200\gamma^9fx^{10} + 80000\gamma^9fx^{17} + 67200\gamma^9fx^{13} - 134400\gamma^9fx^{15} \\
& + 1200\gamma^8fx^{10} - 6300fx^{10}\gamma^5 + 67200fx^{13}\gamma^3 - 134400fx^{15}\gamma^5 \\
& + 12600fx^8\gamma^3 - 2304\gamma^{10}x^{20} + 1200\gamma^2fx^{10} - 15200\gamma^2fx^3 + 1200\gamma fx^{10} \\
& - 15200\gamma fx^3 - 6300fx^{10}\gamma^3 + 80000fx^{17}\gamma^7 + 67200\gamma^6fx^{13} \\
& - 134400\gamma^6fx^{15} + 67200\gamma^5fx^{13} - 6300\gamma^4fx^{10} + 67200\gamma^4fx^{13} \\
& + 12600\gamma^4fx^8 + 18400x^7 + 19050x^3 + 41250\gamma^5x^6 + 51300\gamma^9x^{10} \\
& - 88200\gamma^4x^8 - 57600\gamma^{12}x^{17} - 2304\gamma^{11}x^{20} + 18400\gamma^9x^7 - 30912\gamma^6x^5 \\
& + 60000\gamma^8x^{14} - 864\gamma^2x^{10} - 864\gamma^{11}x^{10} + 18400\gamma^8x^7 + 18400\gamma^7x^7 \\
& + 51300\gamma^4x^{10} - 2304\gamma^{12}x^{20} - 88200\gamma^7x^8 - 44400\gamma^{10}x^{13} - 100800\gamma^6x^{12} \\
& + 18400\gamma x^7 + 175644\gamma^6x^{10} - 100800\gamma^8x^{12} + 51300\gamma^3x^{10} - 88200\gamma^6x^8 \\
& - 864\gamma^{10}x^{10} + 19050\gamma^3x^3 - 57600\gamma^{10}x^{17} + 51300\gamma^8x^{10} - 30912\gamma^5x^5 \\
& - 88200\gamma^3x^8 + 41250\gamma^3x^6 - 44400\gamma^3x^{13} + 41250\gamma^4x^6 - 864x^{10} \\
& + 96768\gamma^{10}x^{15} - 100800\gamma^5x^{12} + 220644\gamma^5x^{10} - 163800\gamma^5x^8 + 18400\gamma^2x^7 \\
& + 96768\gamma^5x^{15} - 74\gamma^2 - 30912\gamma^2x^5 + 220644\gamma^7x^{10} + 19050\gamma^4x^3 \\
& + 96768\gamma^{11}x^{15} - 201600\gamma^7x^{12} + 96768\gamma^7x^{15} - 57600\gamma^9x^{17} - 57600\gamma^{11}x^{17} \\
& - 864\gamma^{12}x^{10} + 60000\gamma^9x^{14} + 96768\gamma^6x^{15} - 30912\gamma^7x^5 - 30912\gamma x^5 \\
& - 57600\gamma^8x^{17} + 60000\gamma^7x^{14} - 57600\gamma^7x^{17} + 19050\gamma^2x^3 - 100800\gamma^9x^{12} \\
& - 44400\gamma^{11}x^{13} - 44400\gamma^4x^{13} + 96768\gamma^{12}x^{15} - 864\gamma x^{10} + 19050\gamma^5x^3 \\
& - 44400\gamma^5x^{13} - 67200\gamma^7x^{13} + 1200fx^{10} - 15200fx^3 - 67200\gamma^9x^{13}
\end{aligned} \tag{3.99}$$

$$\begin{aligned}
a_3 = & 3136 + 3136\gamma + 33600\gamma^8x^{13} + 33600\gamma^6x^{13} - 67200\gamma^8x^{15} \\
& - 67200\gamma^9x^{15} + 600\gamma x^3 + 31200\gamma^{12}x^{13} - 40000\gamma^8fx^{17} - 33600\gamma^8fx^{13} \\
& + 67200\gamma^8fx^{15} - 33600\gamma^7fx^{13} + 67200\gamma^7fx^{15} - 33600\gamma^6fx^{10} \\
& + 6400\gamma^9fx^{10} - 40000\gamma^9fx^{17} - 33600\gamma^9fx^{13} + 67200\gamma^9fx^{15} \\
& + 6400\gamma^8fx^{10} - 33600fx^{10}\gamma^5 - 33600fx^{13}\gamma^3 + 67200fx^{15}\gamma^5 \\
& + 6400fx^{10}\gamma^7 + 67200fx^8\gamma^3 - 2304\gamma^{10}x^{20} + 6400\gamma^2fx^{10} - 6400\gamma^2fx^3 \\
& + 6400\gamma fx^{10} - 6400\gamma fx^3 - 33600fx^{10}\gamma^3 - 40000fx^{17}\gamma^7 \\
& - 33600\gamma^6fx^{13} + 235200\gamma^6x^{12} + 600\gamma^4x^3 + 38400\gamma^{11}x^{17} \\
& + 67200\gamma^6fx^{15} - 33600\gamma^5fx^{13} - 33600\gamma^4fx^{10} - 33600\gamma^4fx^{13} \\
& + 67200\gamma^4fx^8 + 1400x^7 + 600x^3 - 90000\gamma^5x^6 - 101400\gamma^9x^{10} \\
& + 159600\gamma^4x^8 + 38400\gamma^{12}x^{17} - 2304\gamma^{11}x^{20} + 1400\gamma^9x^7 - 2352\gamma^6x^5 \\
& - 140000\gamma^8x^{14} - 2784\gamma^2x^{10} - 2784\gamma^{11}x^{10} + 1400\gamma^8x^7 + 1400\gamma^7x^7 \\
& - 101400\gamma^4x^{10} - 2304\gamma^{12}x^{20} + 159600\gamma^7x^8 + 31200\gamma^{10}x^{13} \\
& + 1400\gamma x^7 - 361536\gamma^6x^{10} + 235200\gamma^8x^{12} - 101400\gamma^3x^{10} + 159600\gamma^6x^8 \\
& - 2784\gamma^{10}x^{10} + 600\gamma^3x^3 + 38400\gamma^{10}x^{17} - 101400\gamma^8x^{10} - 2352\gamma^5x^5 \\
& + 159600\gamma^3x^8 - 90000\gamma^3x^6 + 31200\gamma^3x^{13} - 90000\gamma^4x^6 - 2784x^{10} \\
& - 2352x^5 - 64512\gamma^{10}x^{15} + 235200\gamma^5x^{12} - 496536\gamma^5x^{10} + 386400\gamma^5x^8 \\
& + 1400\gamma^2x^7 - 64512\gamma^5x^{15} + 3136\gamma^2 - 2352\gamma^2x^5 - 496536\gamma^7x^{10} \\
& - 64512\gamma^{11}x^{15} + 470400\gamma^7x^{12} - 64512\gamma^7x^{15} + 38400\gamma^9x^{17} \\
& - 2784\gamma^{12}x^{10} - 140000\gamma^9x^{14} - 64512\gamma^6x^{15} - 2352\gamma^7x^5 - 2352\gamma x^5 \\
& + 38400\gamma^8x^{17} - 140000\gamma^7x^{14} + 38400\gamma^7x^{17} + 600\gamma^2x^3 + 235200\gamma^9x^{12} \\
& + 31200\gamma^{11}x^{13} + 31200\gamma^4x^{13} - 64512\gamma^{12}x^{15} - 2784\gamma x^{10} + 600\gamma^5x^3 \\
& + 31200\gamma^5x^{13} + 33600\gamma^7x^{13} + 6400fx^{10} - 6400fx^3 + 33600\gamma^9x^{13}
\end{aligned} \tag{3.100}$$



$$\begin{aligned}
 a_4 = & 1536 + 1536\gamma - 9600\gamma x^3 - 9600\gamma^{12}x^{13} + 1536\gamma^{10}x^{20} - 9600x^7 \\
 & - 9600x^3 + 60000\gamma^5x^6 + 60000\gamma^9x^{10} - 100800\gamma^4x^8 - 9600\gamma^{12}x^{17} \\
 & + 1536\gamma^{11}x^{20} - 9600\gamma^9x^7 + 16128\gamma^6x^5 + 60000\gamma^8x^{14} + 1536\gamma^2x^{10} \\
 & + 1536\gamma^{11}x^{10} - 9600\gamma^8x^7 - 9600\gamma^7x^7 + 60000\gamma^4x^{10} + 1536\gamma^{12}x^{20} \\
 & - 100800\gamma^7x^8 - 9600\gamma^{10}x^{13} - 100800\gamma^6x^{12} - 9600\gamma x^7 + 169344\gamma^6x^{10} \\
 & - 100800\gamma^8x^{12} + 60000\gamma^3x^{10} - 100800\gamma^6x^8 + 1536\gamma^{10}x^{10} - 9600\gamma^3x^3 \\
 & - 9600\gamma^{10}x^{17} + 60000\gamma^8x^{10} + 16128\gamma^5x^5 - 100800\gamma^3x^8 + 60000\gamma^3x^6 \\
 & - 9600\gamma^3x^{13} + 60000\gamma^4x^6 + 1536x^{10} + 16128x^5 + 16128\gamma^{10}x^{15} \\
 & - 100800\gamma^5x^{12} + 229344\gamma^5x^{10} - 201600\gamma^5x^8 - 9600\gamma^2x^7 + 16128\gamma^5x^{15} \\
 & + 1536\gamma^2 + 16128\gamma^2x^5 + 229344\gamma^7x^{10} - 9600\gamma^4x^3 + 16128\gamma^{11}x^{15} \\
 & - 201600\gamma^7x^{12} + 16128\gamma^7x^{15} - 9600\gamma^9x^{17} - 9600\gamma^{11}x^{17} + 1536\gamma^{12}x^{10} \\
 & + 60000\gamma^9x^{14} + 16128\gamma^6x^{15} + 16128\gamma^7x^5 + 16128\gamma x^5 - 9600\gamma^8x^{17} \\
 & + 60000\gamma^7x^{14} - 9600\gamma^7x^{17} - 9600\gamma^2x^3 - 100800\gamma^9x^{12} - 9600\gamma^{11}x^{13} \\
 & - 9600\gamma^4x^{13} + 16128\gamma^{12}x^{15} + 1536\gamma x^{10} - 9600\gamma^5x^3 - 9600\gamma^5x^{13}
 \end{aligned} \tag{3.101}$$

où  $x = (\phi/\phi_m)^{1/3}$  et on note  $f = \phi_m$  pour la simplicité de l'écriture.

## CHAPITRE 4

---

### Approche par motif morphologique des transitions liquide-solide d'un fluide thixotrope

---

#### 4.1 Introduction

Comme il a été rappelé dans les chapitres précédents, les fluides à seuil se comportent comme des solides lorsqu'on leur applique une contrainte inférieure au seuil et comme des fluides lorsque la contrainte qui leur est appliquée est plus forte que le seuil d'écoulement. Il est donc possible d'observer des transitions liquide-solide d'un fluide à seuil en diminuant la contrainte qui lui est appliquée en partant d'une valeur supérieure au seuil.

La transition liquide-solide se produit lorsque la contrainte appliquée est suffisante pour provoquer la rupture de la structure microscopique du matériau (agrégats de particules, dans le cas de particules présentant des interactions attractives, configurations stables de barres énergies dans le cas de particules présentant des interactions répulsives, réseaux de contacts cohésif dans le cas de matériaux granulaires,...). Dans le cas d'un fluide à seuil simple, on observe que la transition liquide-solide se produit instantanément pour une valeur bien définie de la contrainte seuil quelle qu'est été l'histoire de la sollicitation du matériau. Pour les fluides à seuil simple, la formation de la structure microscopique associée à l'état solide est donc un phénomène instantané.

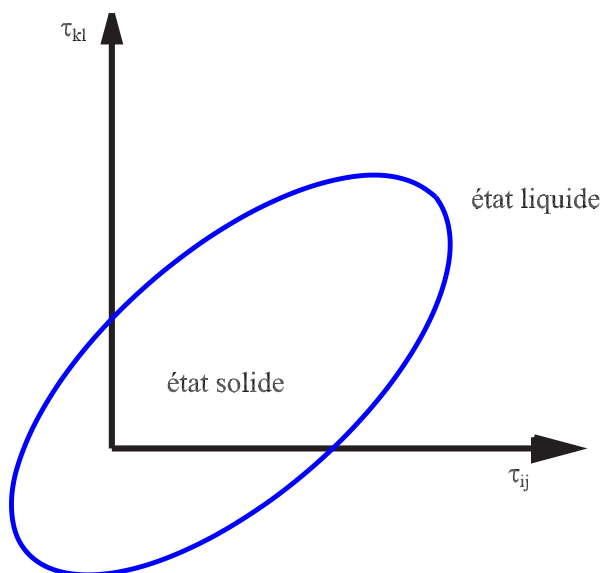


FIG. 4.1 – Transition liquide-solide d'un fluide à seuil simple dans l'espace des contraintes.

De nombreux fluides à seuil ont un comportement thixotrope : leur réponse à une sollicitation donnée (qu'elle soit définie par une contrainte appliquée ou un taux de cisaillement imposé) dépend de l'histoire des sollicitations avant. Pour ce type de matériau, les transitions entre les états solides et liquides ne se produisent pas nécessairement pour une valeur fixée de la contrainte. Il est également couramment observé que lors de l'application d'échelon de contraintes d'intensité variables, les transitions liquide-solide sont observées avec un certain temps de retard par rapport au moment où la valeur de la contrainte appliquée change.

Ce phénomène de transition liquide-solide et d'évolution des propriétés globales des fluides à seuil thixotropes en fonction de leur histoire de déformation sont utilisés dans de nombreuses applications (béton autoplaçant, fluides de forage pétrolier, crèmes cosmétiques,...).

Comme on l'a déjà évoqué dans cette introduction, les origines physiques de la thixotropie et de l'existence d'un seuil sont extrêmement diverses. Si l'on se restreint aux suspensions de particules colloïdales, deux situations bien différentes se présentent suivant que la nature des interactions entre les particules.

Si les interactions sont répulsives, les particules sont maintenues à distance les unes des autres. Quand la suspension est au repos, (c'est-à-dire quand aucune sollicitation mécanique n'est appliquée à la suspension), les particules changent aléatoirement de positions par un processus thermiquement activé. Ces variations de position permettent au système d'évoluer vers des configurations minimisant l'énergie d'interaction des particules, et donc de plus en plus stables. Au fin et à mesure qu'ils « explorent » des configurations de plus en plus stables, ces systèmes deviennent de plus en plus difficile à cisailier et donc à remettre en mouvement. L'application d'un fort taux de cisaillement permet de briser la configuration stable atteinte après un temps de repos important et donc permet au système de particules de retrouver une configuration de haute énergie, qui pourra être cisailée facilement.

Pour ces systèmes, la compétition entre un processus de structuration thermiquement activé et un processus de destructuration provoqué par le cisaillement du matériau est à l'origine du caractère thixotrope des suspensions de particules colloïdales soumises à des interactions répulsives. Comme ces processus s'interprètent et sont modélisés comme des « explorations » de configuration énergétiques des systèmes de particules, il nous paraît très difficile, pour ne pas dire impossible d'associer un schéma morphologique à ce type de suspension colloïdale.

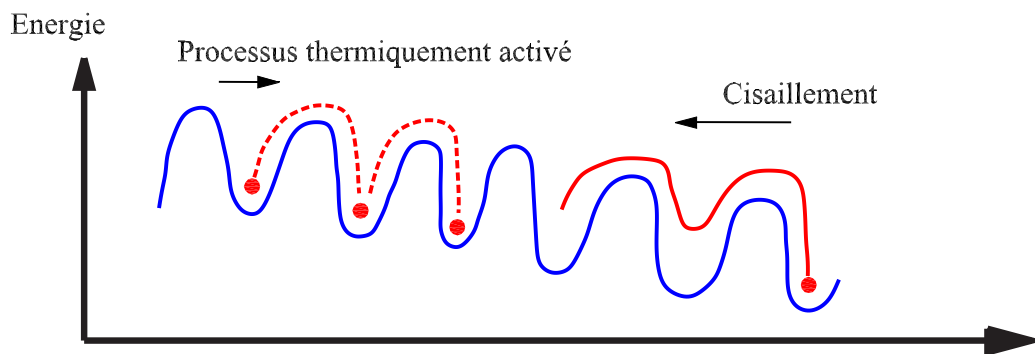


FIG. 4.2 – Exploration de configurations de plus basses énergie par les systèmes colloïdaux répulsifs

Intéressons nous maintenant à la situation inverse d'une suspension colloïdale de particules attractives. En partant d'une configuration dispersée arbitraire, et si la

suspension est au repos, les particules vont s'écarter lentement de leur position initiale à cause du mouvement brownien. Ces déplacements aléatoires des particules vont amener certaines particules à se trouver suffisamment proches les unes des autres pour qu'elles s'agrègent grâce aux interactions attractives. Le temps passant, ces agrégats vont augmenter de taille, se regrouper pour percoler au travers de l'échantillon de matériau considéré, donnant lieu ainsi à une transition liquide-solide. Cette structure constituée par les particules agrégées les unes aux autres pourra bien sur être brisée si une contrainte de cisaillement est suffisamment forte est appliquée au réseau pour briser les liaisons entre particules. Ces suspensions de particules attractives constituent donc un exemple de fluide à seuil thixotrope dont le comportement peut être expliqué à partir de ces caractéristiques microscopiques.

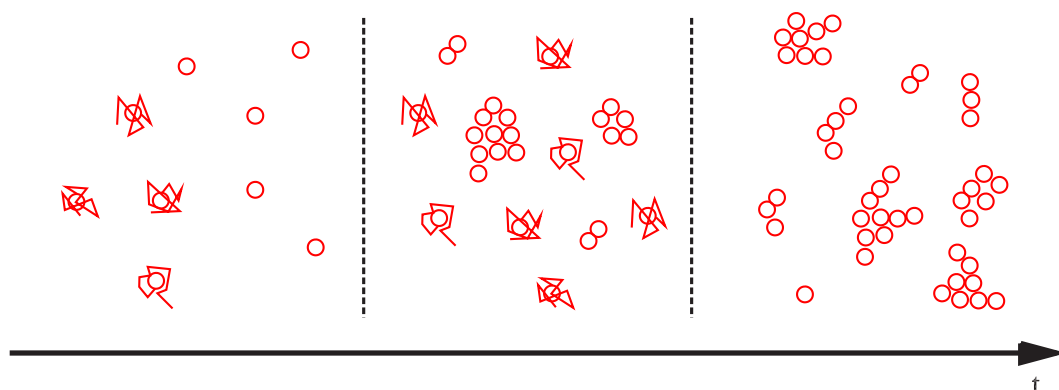


FIG. 4.3 – Evolution des configurations des particules d'une suspension de particules colloïdales attractives laissée au repos

Il convient de noter que les agrégats de particules sont des structures fractales poreuses. Le processus d'agrégation entraîne la formation de particules dont la taille effective est nettement plus importante que celle des particules colloïdales. Si une contrainte de cisaillement suffisamment importante pour cisailier la suspension mais d'intensité trop faible pour casser les agrégats est appliquée au système, la présence de ces « particules effectives » provoquent une augmentation importante de la viscosité globale de la suspension. Les bentonites (suspensions de particules d'argile dans de l'eau) constituent un bon exemple de suspensions colloïdales attractives.

Par ailleurs, la morphologie et les propriétés particulières des particules argileuses explique sûrement le fait que l'on puisse observer des transitions liquide-solide pour

des bentonites contenant une très faible fraction volumique de particules colloïdales (quelque pour cent). Les particules d'argile sont en effet des plaquettes très fines de rapport d'aspect de l'ordre de  $10^2$  (épaisseur de l'ordre de la dizaine de nanomètres, dimension transversale de l'ordre du micromètre). Ces particules s'agrègent les une aux autres par des contacts du type arête-face (voir Fig. 4.4). Cette structure confère aux agrégats de particules argileuses en suspension une structure extrêmement poreuses et permet de former des particules dont la taille effective et de plusieurs ordres de grandeurs supérieures à celle de la particule obtenue en collant les plaquettes d'argile face-contre face.

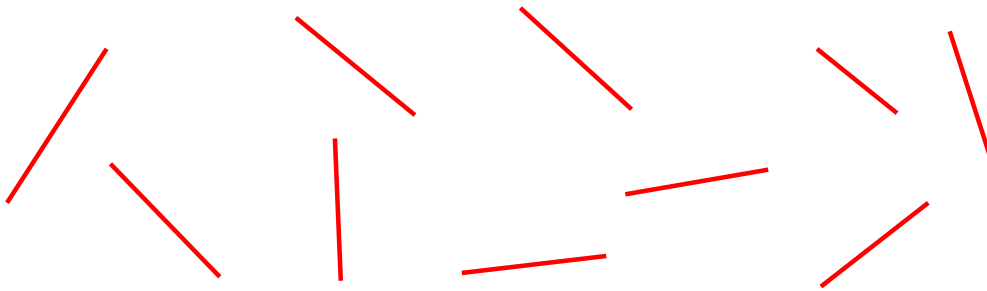


FIG. 4.4 – Plaquettes d'argile en suspension

Revenant maintenant à la modélisation du comportement des suspensions par les outils de la micromécanique, il est clair que la situation se présente sous un jour beaucoup plus favorable pour les suspensions de particules colloïdales attractives que pour les suspension de particules répulsives. Bien sur il n'est pas possible de modéliser les particules colloïdales en utilisant un motif morphologique du type de ceux décrits dans les chapitres précédents : l'existence d'une agitation brownienne d'une part et les interactions colloïdales entre particules d'autre part ne peuvent être prise en compte dans ce cadre. Par contre, l'existence d'agrégats de taille sub-micronique suspendus dans un fluide newtonien est typiquement une situation où les schémas morphologiques se sont révélés d'application tout à fait pertinente aux chapitre 2 et 3. L'objectif de ce chapitre est donc de démontrer qu'une approche par motif est bien capable de modéliser certaines propriétés des suspensions de particules colloïdales attractives (des bentonites). Les restes du chapitre est organisé de la façon suivante : on rappelle tout d'abord les résultats expérimentaux obtenus

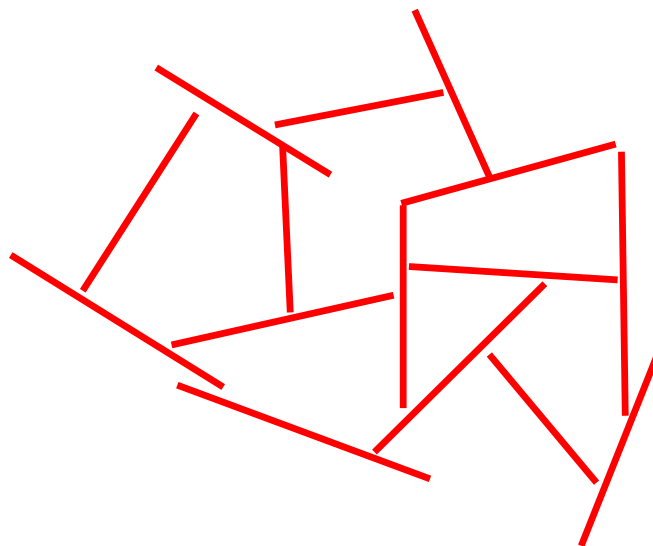


FIG. 4.5 – Agrégat de particules d'argile

par Ovarlez et Coussot [70] concernant les propriétés rhéologiques d'une bentonite au cours d'une transition liquide-solide. Dans un second temps, on montrera qu'il est possible de reproduire certains phénomènes observés en mettant en œuvre un modèle rhéologique particulièrement simple. Enfin, on montrera qu'il est également possible d'utiliser une approche par motif pour reproduire l'évolution des caractéristiques globales de la suspension au cours de la transition liquide-solide. On conclut ce chapitre en recensant brièvement les perspectives ouvertes par ce travail.

## 4.2 Transition liquide-solide d'une bentonite

### 4.3 Matériaux

On décrit ici brièvement les essais présentés dans le papier de Ovarlez et Coussot [70] pour étudier expérimentalement la transition de phase liquide-solide d'un matériau thixotrope. Le lecteur intéressé est renvoyé aux publications de Ovarlez et Coussot [70] et de Ovarlez et Chateau [69] pour plus de détails concernant ce travail.

Un des objectifs de ces travaux est d'évaluer qualitativement l'évolution des propriétés globales d'une bentonite subissant une transition de phase liquide-solide. Les phénomènes étudiés dans cette étude sont réversibles ; il suffit d'appliquer au

matériau une forte sollicitation de cisaillement ou de le soumettre à un mélange énergétique pour le ramener dans son état initial. Pour leurs expériences, Ovarlez et Coussot ont utilisé les suspensions de particules d'argile smectite. Les particules d'argile se présentent sous la forme de feuillets possédant une longueur de l'ordre du micron et une épaisseur d'une dizaine de nanomètres, soit un rapport d'aspect de l'ordre de 100. Ces suspensions d'argile possèdent les propriétés d'un matériau thixotrope : au repos (lorsque la contrainte appliquée est en dessous de la contrainte seuil), elles se structurent et le module élastique augmente ; en écoulement, ces suspensions se déstructurent et leur viscosité diminue. La suspension de bentonite peut être considérée comme un gel colloïdal (Luckham et Rossi [49]). Chaque suspension bentonite a été formulée en mélangeant de façon très forte la phase solide d'argile dans de l'eau. Puis la suspension a été laissée au repos pendant 3 mois avant de l'utiliser pour éviter des phénomènes irréversible (chimique) durant l'expérience.

Les expériences ont été effectuées avec un rhéomètre Bohlin C-VOR 200 avec une géométrie Vane utilisant un croisillon à 6 pales de diamètre 35 mm plongé dans une cuve rugueuse de diamètre 37 mm et de hauteur  $h = 45$  mm.

## 4.4 Procédure de mesure

La mesure des propriétés mécaniques du système liquide-solide consiste à déterminer son module élastique  $G'$  et son module visqueux  $G''$  dans son régime solide. Pour étudier proprement la transition liquide-solide, Ovarlez et Coussot ont utilisé une technique consistant à appliquer une contrainte constante qui induit un écoulement macroscopique en lui superposant une petite oscillation pour mesurer instantanément les modules mécaniques du matériau. La comparaison au cours du temps entre la résistance apparente en écoulement et la réponse en oscillation permettant d'identifier l'état liquide et l'état solide. Avant chaque mesure, chaque échantillon a été pré-cisaillé à un fort taux de cisaillement apparent ( $\dot{\gamma}_p = 200 \text{ s}^{-1}$ ) à une température donnée pendant un temps suffisant pour stabiliser la température. Ensuite, le matériau a subi une contrainte de cisaillement avec une composante constante et une composante sinusoïdale :  $\tau + \tau_0 \sin 2\pi Ft$  avec  $F = 1 \text{ Hz}$  et  $\tau < \tau_c$  où  $\tau_c$  désigne le seuil de contrainte du matériau.  $\tau_0$  est choisie de façon à ce que le matériau testé reste dans son régime linéaire : la déformation en réponse peut être décrite par  $\gamma(t) + \gamma_0 \sin(2\pi Ft + \varphi)$  avec  $\gamma_0$  inférieur à 0.1 %. Le module élastique et le



module visqueux sont calculés en utilisant les relations :  $G''(t) = \tau_0 \cos \varphi / \gamma_0$  et  $G'''(t) = \tau_0 \sin \varphi / \gamma_0$ .

Il a été vérifié que la mesure en oscillation n'affectait pas les propriétés mécaniques du matériau testé (Ovarlez et Chateau [69]). Grâce à ces mesures, on dispose d'une information sur la structure apparente (à travers la viscosité apparente :  $\eta = \tau / \dot{\gamma}$  où  $\dot{\gamma} = d\gamma/dt$ ) et d'une information sur la structure actuelle (au travers des quantités  $G'(t)$  et  $G''(t)$ ).

## 4.5 Observations expérimentales

On rappelle maintenant les observations expérimentales du phénomène de transition liquide-solide obtenues en utilisant la procédure de mesure présentée ci-dessus dans le travail de Ovarlez et Coussot [70]. Au début, le matériau s'écoule et subit une large déformation. L'écoulement décélère continuellement au cours du temps. Pendant cette étape,  $G''$  est plus grand que  $G'$  et augmente au cours du temps. On constate également que  $G''$  est proportionnelle à  $2\eta\pi F$  (voir Fig. 4.6). Ceci indique que le matériau est dans son état liquide. Puis,  $G''$  atteint un pic et commence à diminuer tandis que  $\eta$  tend vers l'infini autour de ce pic ce qui indique que le matériau ne s'écoule plus. En parallèle, le matériau acquiert une caractéristique :  $G'$  augmente brusquement et croise la courbe de  $G''$  quand ce dernier atteint son pic. Cela indique que le matériau est dans son état solide. La transition de partir de l'état liquide à l'état solide correspond également à l'apparition d'un plateau de déformation (voir la figure insérée dans la Fig. 4.6).

Ces observations permettent d'identifier précisément le régime liquide et le régime solide du matériau thixotrope, qui sont associés respectivement avec les régions situées avant et après le pic de la courbe de  $G''$  et le croisement de  $G' - G''$ . Ovarlez et Coussot [70] ont expliqué cet effet à travers le phénomène de percolation : l'augmentation initiale de  $G''$  est la signature de la formation progressive des agrégats solides dans le fluide ; quand la fraction volumique des agrégats atteint une concentration critique, les agrégats forme un réseau solide continu ; cette structure se renforce au cours du temps (provoquant une augmentation brutale de  $G'$ ). Le matériau devient alors vieillissant tandis que  $G''$  décroît.

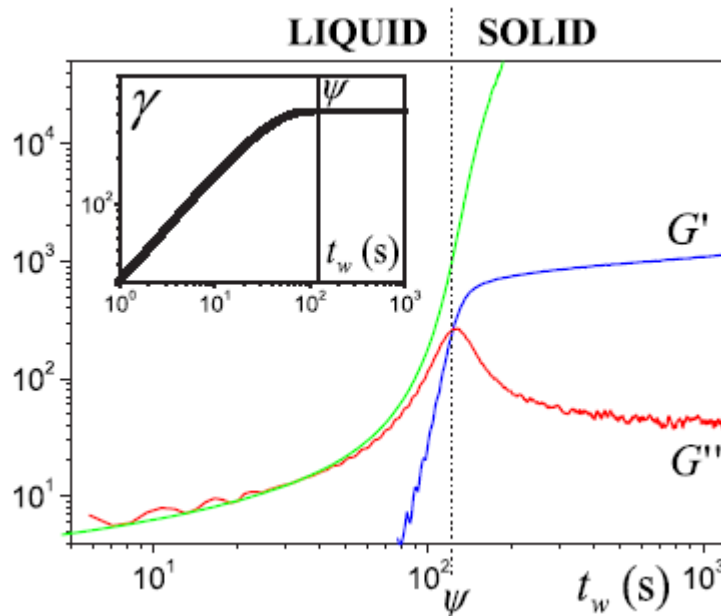


FIG. 4.6 – Module élastique et module visqueux (ligne bleu et rouge) de la suspension de bentonite ( $\phi = 5\%$ ) en fonction du temps  $t_\psi$  après un fort précisaillement pour  $\tau/\tau_c = 87\%$ . La ligne verte représente la viscosité apparente divisée par un facteur 3.5.  $\psi$  est le temps critique de la transition liquide-solide. La ligne pointillée définit la frontière entre le régime liquide et le régime solide. La figure insérée présente la déformation en fonction du temps (figure extraite de Ovarlez et Coussot [70])

## 4.6 Modélisation simplifiée de la transition liquide-solide d'une bentonite

L'objet de ce paragraphe est de montrer qu'il est possible de reproduire certains phénomènes observés par Ovarlez et Coussot [70] en faisant varier les caractéristiques rhéologiques d'un modèle unidimensionnel de fluide Maxwell.

On rappelle que le modèle unidimensionnel de fluide de Maxwell est obtenu en assemblant en série un amortisseur visqueux linéaire et un ressort linéaire (voir Fig. 4.7). Dans la suite de ce paragraphe, on note  $G$  la raideur du ressort,  $\eta$  la viscosité de l'amortisseur,  $\tilde{\sigma}(t)$  la force appliquée et  $\tilde{\gamma}(t)$  le déplacement de l'extrémité du système.

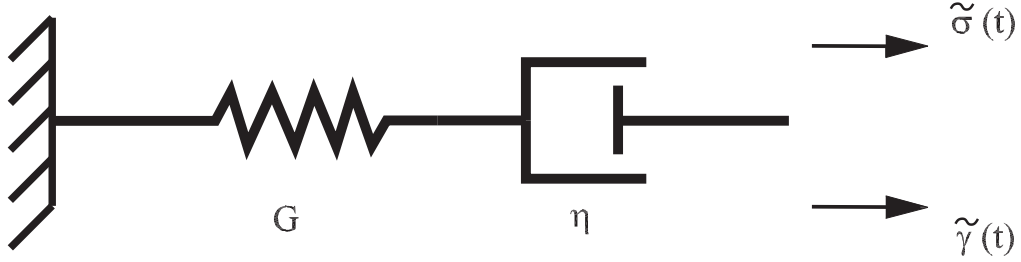


FIG. 4.7 – Modèle unidimensionnel de fluide de Maxwell

On applique au système une sollicitation en force imposée :

$$\tilde{\sigma}(t) = \sigma + \sigma_0 \sin \omega t \quad (4.1)$$

et on s'intéresse à la réponse en déplacement du fluide. Comme pour la bentonite cisailée dans un rhéomètre Couette, la réponse en déplacement s'écrit dans ce cas :

$$\tilde{\gamma}(t) = \gamma(t) + \gamma_0 \sin(\omega t + \varphi) \quad (4.2)$$

$$\gamma(t) = \frac{\sigma}{\eta} t + \frac{\sigma}{G} \quad (4.3)$$

$$\gamma_0 \cos(\omega t + \varphi) = \frac{\sigma_0}{G} \cos \omega t + \frac{\sigma_0}{\omega \eta} \sin \omega t \quad (4.4)$$

On notera que cette solution n'est rigoureusement valable qu'à la condition que les caractéristiques  $G$  et  $\eta$  du système restent constantes au cours du temps. Dans la mesure où l'on s'intéresse à un système évolutif, dont les constantes matérielles  $G$  et  $\eta$  sont susceptibles de varier au cours du temps, cette hypothèse n'est donc pas vérifiée ici. On supposera dans la suite que les évolutions de  $G$  et  $\eta$  sont suffisamment lente pour que l'on puisse continuer à écrire la solution en déplacement sous la forme (4.3) et (4.4).

Le module de stockage  $G'$  et le module de perte  $G''$  sont respectivement définis par les relations (Ovarlez et Coussot [70]) :

$$G' = \frac{\sigma_0 \cos \varphi}{\gamma_0} \quad \text{et} \quad G'' = \frac{\sigma_0 \sin \varphi}{\gamma_0} \quad (4.5)$$

Un calcul simple à partir des relations (4.4) et (4.5) permet d'obtenir les valeurs de

$G'$  et  $G''$  pour le système étudié :

$$G' = \frac{G\omega^2\eta^2}{G^2 + \omega^2\eta^2} \quad \text{et} \quad G'' = \frac{G^2\omega\eta}{G^2 + \omega^2\eta^2} \quad (4.6)$$

Pour simplifier, et conformément à l'usage, les modules  $G'$  et  $G''$  sont positifs. A la lecture des relation (4.6), il apparaît clairement que les modules  $G'$  et  $G''$  dépendent des valeurs de  $G$  et  $\eta$ . Si ces grandeurs évoluent au cours du temps, alors les modules  $G'$  et  $G''$  varieront également. Par ailleurs, la viscosité globale du système est définie par le rapport de  $\sigma(t)/\dot{\gamma}(t)$  où  $\dot{\gamma}(t)$  désigne la dérivée par rapport au temps de  $\gamma(t)$ . Un calcul élémentaire permet de montrer que pour le modèle de Maxwell, la viscosité globale du système est égale à  $\eta$ .

Intéressons nous maintenant aux variations de  $G'$  et  $G''$  dues aux variations des paramètres  $G$  et  $\eta$ . On peut mener facilement cette étude en introduisant le temps caractéristique du système  $\tau$  défini par :

$$\tau = \eta/G \quad (4.7)$$

On a alors :

$$G' = G \frac{\omega^2\tau^2}{1 + \omega^2\tau^2} \quad \text{et} \quad G'' = \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (4.8)$$

On a représenté sur la Fig. 4.8 les variations de  $G'$ ,  $G''$  et  $\omega\eta$  en fonction de  $\tau$ .

Comme on le voit sur la Fig. 4.8, l'augmentation de la viscosité à élasticité fixée, provoque tout d'abord une augmentation simultanée du module de stockage  $G'$  et du module de perte  $G''$ . Alors que la quantité  $G'$  est une fonction monotone du paramètre  $\tau$ , le module de stockage atteint un maximum pour la valeur  $\tau = 1/\omega$  avant de décroître jusqu'à zéro pour les fortes valeurs de la viscosité. Comme il a été constaté expérimentalement par Ovarlez et Coussot, le point où le module de perte atteint sa valeur maximale est également le point d'intersection entre les courbes  $G'$  et  $G''$ . On remarque également que pour les faibles valeur du rapport  $\eta/G$ , le module de perte  $G''$  évolue comme le produit viscosité globale  $\eta$  par la pulsation de la sollicitation sinusoïdale appliquée. Evidemment, il est impossible d'affirmer que le modèle de Maxwell permet de modéliser le comportement de la suspension de bentonite étudiée par Ovarlez et Coussot. Déjà, les évolutions de  $G'$ ,  $G''$  et de la viscosité

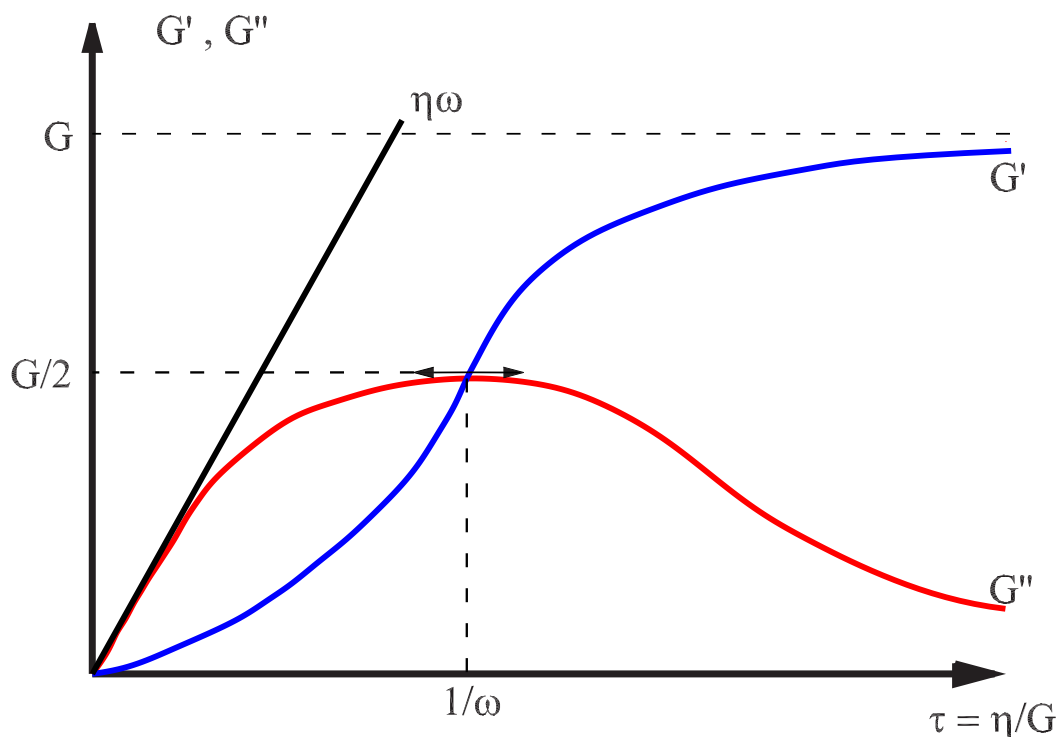


FIG. 4.8 – Evolutioni de  $G'$ ,  $G''$  et  $\omega\eta$  en fonction du rapport  $\eta/G$  pour un modèle de fluide de Maxwell

sont représentées sur la Fig. 4.6 en fonction du temps alors que sur la Fig. 4.8, on a représenté les variations des quantités  $G'$ ,  $G''$  et  $\omega\eta$  en fonction d'une variable  $\tau$ , qui si elle a bien la dimension d'un temps, n'est en fait qu'une mesure du rapport de la viscosité sur l'élasticité. Par ailleurs, le modèle de Maxwell est un modèle de fluide : il est incapable de rendre compte de l'existence d'un seuil de contrainte et donc d'une transition liquide-solide ou solide-liquide.

Il n'en reste par moins que ce modèle très simple permet de relier le phénomène de « croissance » des courbes  $G'$  et  $G''$  en fonction du temps à une augmentation du rapport viscosité sur élasticité. Si on veut se rapprocher de la situation des bentonites transitant d'un état liquide à un état solide, il conviendrait sûrement d'envisager des évolutions conjointes du module d'élasticité  $G$  et de la viscosité  $\eta$ . Les résultats obtenus pour le modèle de Maxwell semblent indiquer que le phénomène d'intersection des courbes  $G'$  et  $G''$  est le signe que l'accroissement de la viscosité est plus « rapide » ou « important » que l'accroissement de la rigidité élastique.

L'interprétation et l'identification des paramètres  $\eta$  et  $G$  du modèle à partir des résultats de l'expérience décrite dans Ovarlez et Coussot ne pose pas de problème particulier. Le paramètre  $\eta$  représente la viscosité globale de la suspension telle que l'on peut la mesurer dans une expérience à effort constant imposé (équation (4.3) dérivée par rapport au temps). Cette caractéristique a été mesurée dans les expériences décrites par Ovarlez et Coussot. Pour identifier la valeur du coefficient d'élasticité  $G$ , le plus simple est d'observer que le module de stockage  $G'$  tend vers  $G$  quand le rapport  $\eta/G$  tend vers l'infini. Cet état correspond à l'état atteint par la suspension quand  $t \rightarrow \infty$ , ce qui permet, au phénomène de vieillissement près, d'identifier sans équivoque la valeur de  $G$  pour la suspension de bentonite. De plus, comme le modèle de Maxwell tend vers un modèle élastique linéaire simple quand  $\eta$  tend vers l'infini, il est tentant de conclure de cette analyse que le module d'élasticité  $G$  mesure la raideur intrinsèque des agrégats de particules argileuses et que cette valeur de la rigidité est accessible expérimentalement aux temps longs, lorsque les agrégats ont percolé au travers de l'échantillon de bentonite. Cette interprétation est tout à fait satisfaisante car elle repose sur une interprétation physique claire des paramètres du modèle unidimensionnel (viscosité globale ou macroscopique de la suspension et module d'élasticité des agrégats de particules). Elle n'en reste par moins une simple interprétation reposant uniquement sur une analogie entre deux problèmes de nature mécanique et physique assez différentes : un modèle simple unidimensionnel et une suspension de particules colloïdales suspendues dans un fluide. Comme on va le montrer dans la suite, il est possible de construire un modèle micromécanique permettant de modéliser le comportement d'une suspension de bentonite subissant une transition liquide-solide.

## 4.7 Modélisation micromécanique de la transition liquide-solide

Comme il a été expliqué dans les paragraphes précédents, le phénomène de transition liquide-solide observé sur les suspensions de bentonite après application d'un fort cisaillement est la conséquence d'un processus d'agrégation des particules argileuses initialement dispersées dans la phase fluide suspendante. On attribue l'augmentation de la viscosité à la formation d'agrégats macroscopiques (relativement à la taille des particules d'argile) qui se comportent comme des particules

solides tant que la contrainte macroscopique appliquée à la suspension n'est pas trop importante. Cette analyse suggère d'utiliser un modèle morphologique du même type de ceux considérées au chapitre 3 pour modéliser les effets de ce phénomène d'agrégation.

Plus précisément, les agrégats de particules argileuses sont modélisées comme des particules sphériques à comportement élastique linéaire. Compte de la forme des particules d'argile, il est bien évident que ces particules sont poreuses et que leur comportement réel est certainement du type viscoélastique. Néanmoins, par simplicité et parce qu'il est tout à fait probable que la viscosité de ces particules est beaucoup plus grande que celle du liquide suspendant (eau et particules d'argile suspendues), on acceptera cette hypothèse en première approximation. Ces agrégats sont suspendus dans le fluide suspendant. Comme on l'a vu dans les chapitres précédents, la distribution de taille des agrégats est un paramètre influant considérablement sur les caractéristiques macroscopiques du système étudié. Comme ici, les particules solides sont formées par un processus d'agrégation de petites particules, il est attendu qu'à tout instant coexistence différentes tailles de particules. On considérera donc que le modèle de sphères composites de Hashin permet de bien représenter la morphologie de la suspension.

Le motif considéré ici est constitué d'une particule de rayon  $a$  de module élastique  $G$  incompressible entourée d'une coque de rayon extérieur  $b$  constitué de fluide purement visqueux de viscosité  $\eta$ . On note  $x = a/b$  le rapport entre le rayon de la particule et le rayon de la couche extérieure et  $\phi = x^3$  la fraction volumique occupée par la particule au sein du motif. Chaque fraction volumique en particules solides correspond à un moment du processus d'agrégation. La fraction volumique  $\phi$  varie de 0 (état initial où toutes les particules d'argile sont parfaitement dispersées dans le fluide suspendant) à 1 (état final où les agrégats ont percolé au travers du volume d'élémentaire de suspension) (voir Fig. 4.9).

Dans l'approche décrite ci-dessus, il n'a pas été tenu compte d'une éventuelle modification de la teneur en particules d'argile de la phase liquide au cours du processus d'agrégation (or pourrait prendre en compte ce phénomène en modifiant la valeur de la viscosité du fluide suspendant). Dans la mesure où l'objectif de cette étude est simplement d'apprécier qualitativement l'aptitude d'un modèle morphologique à décrire le phénomène de transition liquide-solide, ce point ne sera pas abordé dans

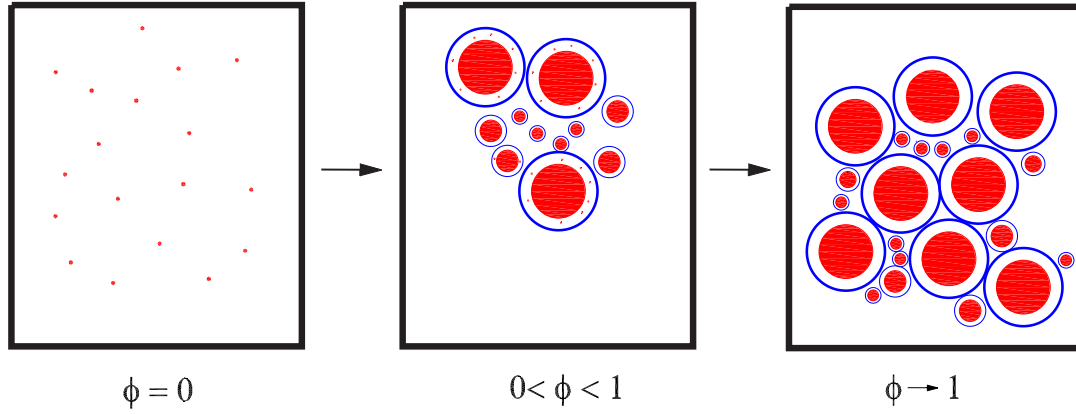


FIG. 4.9 – Prise en compte du phénomène d’agrégation des particules argileuses au moyen d’un schéma morphologique à un motif

la suite.

Pour complètement prédire les caractéristiques macroscopiques mesurées par Ovarlez et Coussot, il convient de calculer la viscosité macroscopique et les modules complexes du milieu. La viscosité globale de la suspension est estimée en considérant que les particules sont indéformables (i.e. de viscosité infinie) et que le fluide porteur est de viscosité  $\eta$ . La solution de ce problème a été présentée au chapitre 3 (formule (3.82) et formule donnée dans l’annexe (3.6)).

Pour déterminer le module complexe du matériau, le plus simple est de poser le problème d’homogénéisation dans l’espace complexe (pour les coefficients caractérisant le comportement des constituants du matériau hétérogène). Le VER étant soumis à la sollicitation macroscopique  $\mathbf{E}^* = \mathbf{E}^0 e^{i\omega t}$ , les inclusions sont caractérisées par le module complexe  $G_{inc}^* = G$  et le matériau des couronnes par le module complexe  $G_H^* = i\omega\eta$ . D’un point de vue théorique, la résolution du problème d’homogénéisation s’effectue exactement comme dans le cas élastique linéaire classique sauf que les tenseurs de localisation et les tenseurs d’élasticité microscopiques et macroscopiques sont des tenseurs à coefficients complexes. La seule difficulté pratique à résoudre pour estimer les caractéristiques macroscopiques du milieu hétérogène est de pouvoir disposer de généralisations « complexes » des solutions de problèmes d’inclusion, de sphères composites...nécessaires. Dans le cas de l’assemblage de sphère composites de Hashin, on vérifie sans difficulté en repartant dans la solution du problème



d'inclusion sphérique inhomogène qu'il suffit d'utiliser les relations valables pour le milieu élastique linéaire en remplaçant les coefficients d'élasticité par leurs valeurs complexe pour produire le résultat cherché. Dans le cas qui nous occupe ici, le module  $G^{*hom}$  de l'assemblage de sphère composites se calcule donc en résolvant une équation du second degré à coefficients complexes.

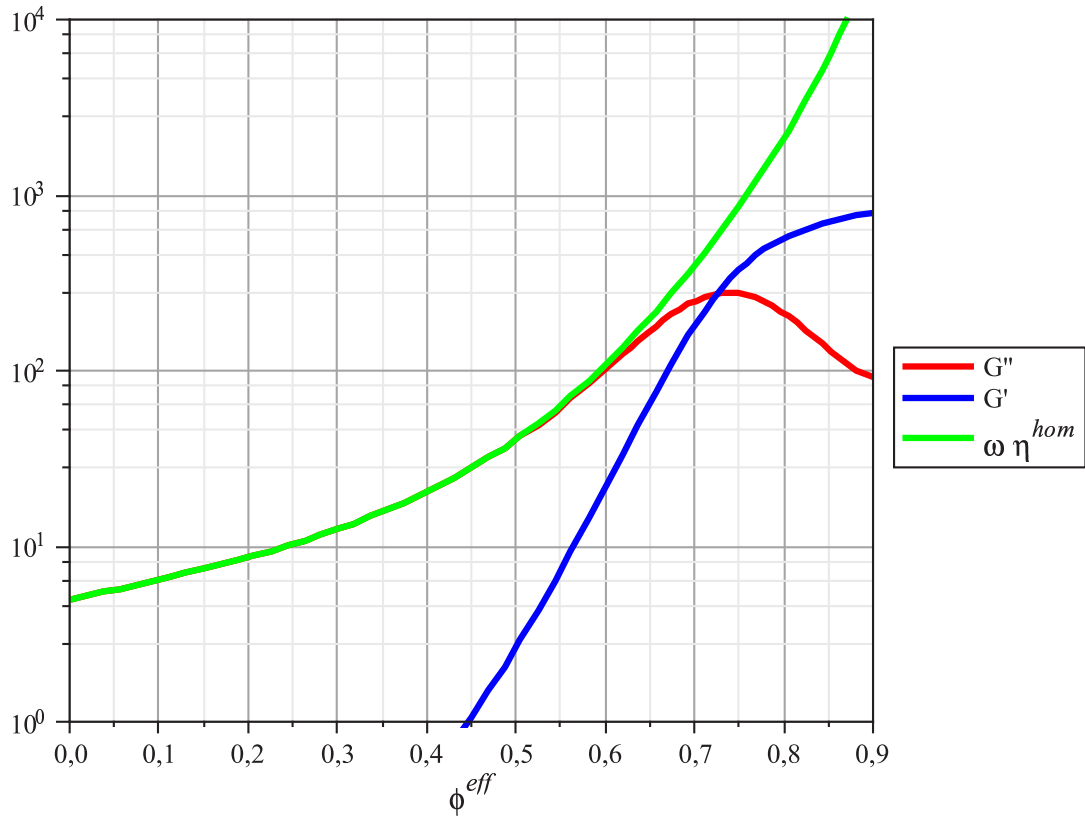


FIG. 4.10 – Evolution des modules  $G'$  (bleu),  $G''$  (rouge) et du produit  $\omega \times \eta^{hom}$  (vert) pour le modèle de sphères composites de Hashin en fonction de la fraction volumique en agrégats. Courbes obtenus pour  $G = 2000$  Pa dans les agrégats et  $\eta\omega = 5$  Pa dans le fluide.

On a présenté sur la Fig. 4.10 les évolutions du module de stockage  $G'$ , du module de perte  $G''$  et du produit de la pulsation par la viscosité macroscopique en fonction de la fraction volumique  $\phi$  occupée par les agrégats. Les prédictions représentées sur la Fig. 4.10 ont été obtenues par le jeu de données suivant :  $G = 2000$  Pa pour les particules,  $G'' = \eta\omega = 5$  Pa pour le fluide. Comme on le constate en comparant la Fig. 4.10 aux résultats expérimentaux de la Fig. 4.6, le modèle morphologique

est capable de reproduire les principaux traits caractérisant le comportement de la suspension : un module  $G'$  qui augmente brusquement puis qui atteint un plateau de faible croissance en suite, un module  $G''$  qui augmente régulièrement avant d'atteindre un maximum et de décroître jusqu'à une valeur plateau, les courbes de  $G'$  et  $G''$  s'intersectant par ailleurs au point où  $G''$  atteint sa valeur maximale. Le modèle permet également de prédire l'évolution du produit pulsation par viscosité macroscopique similaire à celle de  $G''$  dans le régime liquide avant que cette quantité augmente brusquement juste avant que les courbes de  $G'$  et  $G''$  s'intersectent. La principale différence entre résultats expérimentaux et résultats théoriques est que l'évolution de la viscosité macroscopique mesurée autour de la transition liquide-solide est beaucoup plus rapide que celle prédite par le modèle. Enfin, on constate que les ordres de grandeurs prédits par le modèle sont en bon accord avec ceux des courbes expérimentales. De cette confrontation entre résultats théoriques et résultats expérimentaux, et à condition d'admettre qu'il existe bien une relation permettant de relier les valeurs de la fraction volumique  $\phi$  occupée par les agrégats au temps  $t_w$  mesuré à partir de la fin du fort précisaillement, il apparaît clairement que l'approche par motif morphologique est pertinente pour modéliser le comportement des suspensions colloïdales.

Le modèle morphologique permet également de mieux représenter les résultats expérimentaux que le modèle de fluide unidimensionnel de Maxwell. Ainsi, on constate sur la Fig. 4.10 que le modèle morphologique prédit une stabilisation de la valeur du module de perte  $G''$  pour les fortes valeurs de  $\phi$  (et donc pour les grandes valeurs de  $t_w$ ) alors que le modèle unidimensionnel prédit que  $G''$  tend vers zéro quand la viscosité tend vers l'infini (et donc  $t_w$  tend vers l'infini).

## 4.8 Conclusion

Dans ce chapitre on s'est intéressé à la modélisation d'un phénomène de changement d'état liquide-solide d'une suspension colloïdale. Ces changements d'état suite à une forte sollicitation mécanique sont caractéristiques du comportement des systèmes complexes évoluant entre un état liquide et un état solide. Après avoir brièvement rappelé les origines microscopique (i.e. à l'échelle des particules) de cet état particulier de la matière, nous avons présenté les résultats d'une expérience permettant de bien caractériser certaines propriétés caractéristiques d'une suspension de bentonite.

Nous avons alors montré qu'un simple modèle rhéologique unidimensionnel permettait d'attribuer à une augmentation du caractère visqueux du matériau (en comparaison à son élasticité de cisaillement) les propriétés mises en évidence expérimentalement.

Dans une seconde partie, nous avons montré qu'il était également possible de prédire les résultats expérimentaux dans le cadre d'une modélisation du matériau par motifs morphologiques. Même si le modèle mis en œuvre dans ce chapitre reste très sommaire, le bon accord obtenu entre prévisions théoriques et résultats expérimentaux permet de démontrer l'intérêt d'une approche par changement d'échelle du comportement des systèmes thixotropes.

Il n'en reste pas moins que le travail restant à accomplir pour arriver à une modélisation complètement satisfaisante reste encore important. Premièrement, il conviendrait d'enrichir le modèle en tenant compte d'une description de la cinétique d'agrégation des particules colloïdales, ce qui permettrait d'établir le lien entre valeur de la fraction volumique en agrégats et temps écoulé après la fin de l'application d'un fort cisaillement. Un second élément important serait d'établir un lien entre la microstructure des agrégats, les caractéristiques mécaniques de cet agrégat considéré comme un milieu continu (module de stockage et module de perte notamment) et les capacités de résistance de cet agrégat. Ces éléments permettraient d'intégrer à la modélisation de la suspension proposée ici une prédiction du seuil d'écoulement macroscopique. Il conviendrait également de mieux caractériser les caractéristiques de la suspension de particules argileuses dispersées dans l'eau qui joue le rôle de fluide suspendant dans l'approche par motif. Comme on l'a déjà signalé, une meilleure description du comportement du fluide suspendant en fonction de sa teneur en particules permettrait sûrement de mieux gérer et donc décrire les effets du transfert de particules du fluide suspendant vers les agrégats.

La dernière piste d'amélioration que nous évoquerons concerne justement la description de la morphologie des agrégats. Comme on l'a signalé plus haut, le modèle de sphères composites de Hashin ne permet pas de décrire de façon complètement satisfaisante les évolutions de la viscosité macroscopique et des modules complexes de la suspension (croissance trop lente de la viscosité à l'approche de la transition liquide-solide). Il nous semble que l'origine de ce défaut de la modélisation est à chercher dans une description non complètement satisfaisante de la morphologie des agrégats.

gats. Il conviendrait donc de proposer des modèles morphologiques plus élaborés de la microstructure de ces suspensions en se référant aux caractérisations expérimentales de cette microstructure disponibles dans la littérature (Luckham et Rossi [49]).

Pour finir, et même si le travail restant à fournir est tout à fait conséquent avant d'espérer arriver à une modélisation complètement satisfaisante de ce type de matériau, il nous semble néanmoins que les résultats préliminaires exposés ici démontrent de façon convaincante que les approches par motifs morphologiques constituent une voie prometteuse et originale en rhéologie des systèmes complexes.



## CHAPITRE 5

---

### Etude expérimentale de la structuration et de la déstructuration d'un matériau thixotrope

---

#### 5.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, on a modélisé la transition de phase liquide-solide d'un matériau thixotrope dans le cadre d'une approche micromécanique. Les matériaux thixotropes présentent tous des tendances similaires : les évolutions au cours du temps de leurs caractéristiques rhéologiques et la microstructure du matériau dépendent de l'histoire de l'écoulement, c'est-à-dire, de l'histoire du taux de cisaillement (Coussot [22] ; Dullaert et Mewis [32] ; Mewis [56]).

De nombreux auteurs ont étudié la structure d'une suspension thixotrope soumise à un écoulement stationnaire et les relations entre la structure du matériau et ses propriétés rhéologiques (voir Stickel et Powell [77] ; Larson [48] ; Vermant et Solomon [87] pour des revues récentes). Il a été montré que le changement des propriétés du matériau en fonction de l'histoire de cisaillement était relié au changement de sa structure interne. Par contre, quand on applique « longtemps » à une suspension thixotrope un cisaillement stationnaire, on peut obtenir un état unique bien caractérisé de la structure du matériau (Ovarlez et Chateau [69]) : cette structure dépend alors seulement de la valeur du taux de cisaillement appliqué pendant le précisaillement.

La thixotropie ne joue aucune rôle lorsque l'on s'intéresse à des matériaux en régime permanent comme par exemple des bétons en écoulement établi (états rencontrés lors des opérations de pompage, malaxage...). Le comportement du matériau peut alors être décrit par une loi de fluide à seuil simple (Coussot et Roussel [25]). Par contre, la thixotropie doit être prise en compte dans l'étude des régimes transitoires qui sont majoritaires lors des phases de mise en œuvre (comme par exemple lors du remplissage d'un coffrage du béton, du coulage d'une dalle...). Un des facteurs importants lorsqu'on étudie la thixotropie est le temps caractéristique en régime transitoire. Considérons par exemple un système de pompage de béton autoplaçant (BAP). La puissance maximum de la pompe peut être réduite grâce à la fluidité du matériau lors de la mise en œuvre. Après une pause longue, le matériau se structure et son seuil de contrainte apparent augmente : le béton peut alors se figer dans la buse, la puissance de la pompe est alors insuffisante pour redémarrer l'écoulement et le circuit de pompage doit être intégralement démonté. Actuellement il n'existe pas de techniques permettant de quantifier la durée maximum de pause permettant d'éviter ce type de problème (Coussot et Roussel [25]).

L'objectif de ce chapitre est d'étudier expérimentalement l'effet de l'histoire de l'écoulement sur la structuration d'une suspension thixotrope et précisément du cisaillement sur le taux de structuration et de déstructuration. On a donc mis en place un protocole expérimental permettant d'étudier ce problème. On a notamment montré que le taux de structuration et de déstructuration ne dépend pas de la valeur du taux de cisaillement appliqué.

Dans la section qui suit, on présente les matériaux utilisés ainsi que la procédure expérimentale utilisée pour la caractérisation rhéologique d'une suspension thixotrope. Ensuite, l'effet de l'histoire du taux de cisaillement appliqué est étudié pour une suspension colloïdale thixotrope. Cette étude est ensuite étendue au cas où des particules non colloïdales sont ajoutées à une suspension colloïdale. Cette étude permet de valider encore une fois la pertinence de l'estimation sécante utilisée dans l'approche homogénéisation non-linéaire présentée dans le chapitre 2.

## 5.2 Matériaux et Procédure expérimentale

### 5.2.1 Matériaux

Afin d'évaluer l'influence du taux de cisaillement sur la cinétique de structuration et de déstructuration du matériau, nous avons utilisé les suspensions de particules de smectites. Ces matériaux présentent les propriétés d'un matériau purement thixotrope ; les évolutions de leurs caractéristiques rhéologiques sont réversibles et à un taux de cisaillement donné, correspond un état stationnaire unique quelque soit l'histoire de cisaillement appliquée préalablement au matériau. La formulation d'une suspension de bentonite smectite a été présentée dans le chapitre 4. On rappelle ici qu'après sa formulation, la bentonite a été laissée longtemps au repos pour éviter des phénomènes irréversibles durant l'expérience.

Les suspensions de particules non colloïdales dans une suspension colloïdale ont été formulées en mélangeant des billes de polystyrène cristal (hydrophobes) de densité  $1.05 \text{ g/cm}^3$  et de diamètre de  $40 \text{ }\mu\text{m}$  avec la bentonite. Les billes sont soigneusement lavées pour éviter des modifications du comportement des pâtes de nature physico-chimique. Il est à noter ici qu'on a bien la séparation d'échelle entre la suspension colloïdale et les particules non colloïdales.

### 5.2.2 Procédure expérimentale

L'état de structuration des matériaux thixotropes dépendant du taux de cisaillement auquel ils sont soumis, il est essentiel d'utiliser des géométries dans lesquelles le cisaillement est le plus homogène possible pour avoir un matériau ayant la même structure bien définie dans tout l'entrefer. La géométrie cône-plan est donc la plus adaptée.

Les expériences ont été effectuées sur un rhéomètre Bohlin C-VOR 200 avec une géométrie cône-plan tronqué d'angle  $2^\circ$  de diamètre 40 mm. Une géométrie plan-plan de diamètre 40 mm et de hauteur 1.5 mm a aussi été utilisée pour vérifier l'indépendance entre les résultats observés et la géométrie. Du papier de verre a été collé sur les surfaces des géométries pour éviter le glissement au cours de l'expérience.

L'étude de la structuration et de la déstructuration des matériaux thixotropes s'effectue par des expériences de sauts de taux de cisaillement (Toorman [84] ; Dullaert



et Mewis [32]). Pour avoir des résultats reproductibles, il faut s'assurer que quelle que soit l'expérience, l'état initial est parfaitement défini pour pouvoir ensuite analyser l'évolution du matériau. Pour cela, pour chaque essai, il faut partir d'un état stationnaire et l'état de la structure du matériau doit toujours être la même, c'est-à-dire, à l'état le plus déstructuré possible. C'est la raison pour laquelle le matériau subit un précisaillement dont la valeur du taux de précisaillement est la plus grande possible ( $\dot{\gamma}_0 = 150 \text{ s}^{-1}$ ) pendant un temps suffisamment long (300 s).

Dans ces expériences, on applique ensuite un taux de cisaillement constant  $\dot{\gamma}_1$  pendant un temps suffisamment long (300 s) pour que la viscosité apparente du matériau soit stationnaire. Puis, on change brutalement la valeur du taux de cisaillement vers une valeur  $\dot{\gamma}_2$  plus faible ou plus élevée jusqu'à ce que la viscosité atteigne une nouvelle valeur stationnaire. On étudie la réponse du matériau en observant l'évolution de la viscosité au cours du temps, le temps  $t = 0$  s'étant défini comme l'instant de l'application du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_1$ .

Grâce à ces expériences, on peut avoir des informations importantes sur la structuration et la déstructuration du matériau (voir Fig. 5.1). Tout d'abord, on peut déduire les valeurs de viscosité stationnaires qui correspondent aux différents états stationnaires atteints par le matériau aux différents taux de cisaillement imposés. Ensuite, en relevant les valeurs de viscosité obtenues juste après le saut de taux de cisaillement pour diverses valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ , on obtient une caractérisation pour une large gamme de taux de cisaillement du comportement intrinsèque du matériau ayant la structure stationnaire obtenue par un cisaillement à  $\dot{\gamma}_1$  (Toorman [84]). Enfin, la cinétique de changement de viscosité donne une information sur les cinétiques de structuration et déstructuration. Lorsque la réponse peut-être modélisée par une exponentielle simple, un temps caractéristique de structuration ou de déstructuration peut-être extrait (Mujumdar et al. [60]; Coussot [22]). On peut donc étudier la dépendance du temps caractéristique avec les taux de cisaillement imposés. C'est l'objectif principal de ce travail.

### Résumé de la procédure de mesures :

En résumé, le protocole expérimental que nous avons employé consiste en quatre étapes :

- **Préparation** : Nous préparons une suspension de bentonite avec une fraction

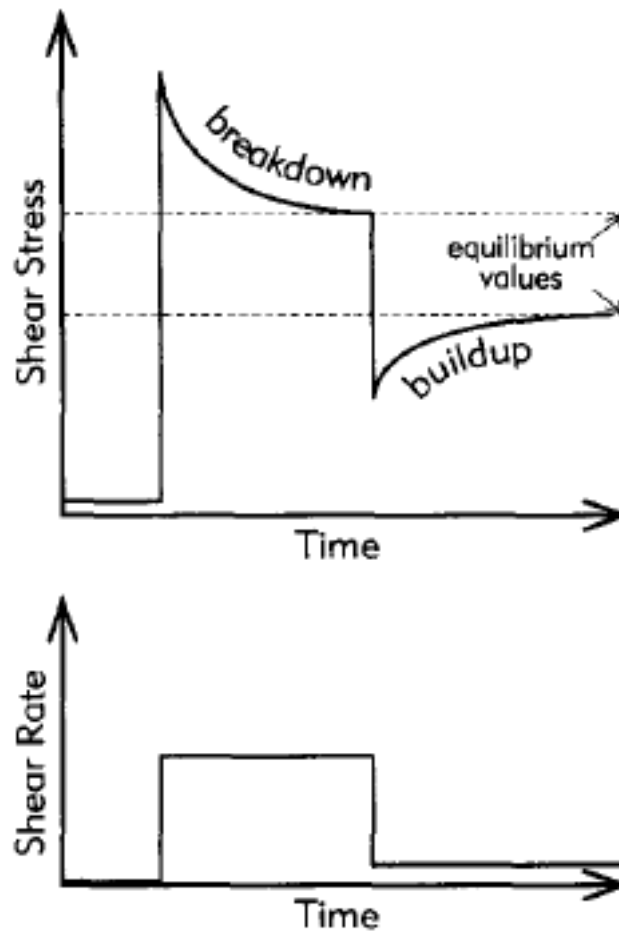


FIG. 5.1 – Représentation schématique de la réponse temporelle en contrainte de cisaillement lorsqu'un matériau thixotrope est soumis à un saut de taux de cisaillement (figure extraite de Barnes [4])

volumique en particules d'argile donnée (3.5 %). La suspension non colloïdale est formulée en mélangeant des billes polystyrènes (40 % fraction volumique) de diamètre  $40 \mu\text{m}$  dans la suspension de bentonite. Afin d'effectuer des essais sur les mêmes systèmes, avec ou sans particules, il est nécessaire de les déstructurer pour avoir un état initial comparable. A cette étape, le matériau est agité manuellement de façon très forte.

- **Mise en place - précisaillement** : Le matériau est mis en place dans le rhéomètre avec la géométrie choisie (cône-plan et plan-plan). Le système est complètement couvert afin d'éviter l'évaporation. L'échantillon est ensuite précisailé à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_0 = 150 \text{ s}^{-1}$  pendant  $300 \text{ s}$ .

- **Saut de taux de cisaillement :** Après le précisaillement, on applique un taux de cisaillement constant  $\dot{\gamma}_1$  pendant 300 s. Ensuite, la valeur du taux de cisaillement est changé brutalement vers une valeur  $\dot{\gamma}_2$  plus faible ou plus élevée jusqu'à ce que la viscosité atteigne une nouvelle valeur stationnaire. On obtient alors à cet étape une mesure de contrainte en fonction du temps.
- **Nouvelle préparation pour le nouvel essai :** Après chaque manipulation, le matériau est déstructuré. Pour la suspension de particules non colloïdales, il peut aussi s'être produit une migration des particules, ce qui rend la microstructure du matériau anisotrope. On remarque que le précisaillement manuel ne permet pas d'avoir strictement le même état initial pour les matériaux thixotropes. c'est pourquoi on doit préparer un nouvel matériau pour chaque nouvelle mesure.

## 5.3 Résultats expérimentaux

Nous présentons dans cette section les résultats obtenus pour les différentes expériences menées sur systèmes modèles. Dans un premier temps, nous nous intéressons à l'influence de l'histoire de l'écoulement sur la cinétique de structuration et de déstructuration d'une suspension de bentonite. Ensuite, nous étendons ce travail en étudiant le comportement d'une suspension de particules non colloïdales dans une suspension colloïdale.

### 5.3.1 Suspension colloïdale de particules d'argile

Tout d'abord, nous nous intéressons aux résultats obtenus pour le cas où on applique tout d'abord au matériau un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  puis différentes valeurs du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_2$ . Les Fig. 5.2 et Fig. 5.3 représentent l'évolution de la contrainte de cisaillement au cours du temps lorsqu'une suspension bentonite est soumise à des sauts de taux de cisaillement.

On constate déjà qu'on a obtenu des résultats bien reproductibles. L'état de la structure du matériau après le précisaillement est bien défini et est le même au terme des 300 secondes où on a appliqué un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  pour différentes expériences. On constate également que le temps d'application du taux de cisaillement (300 s) à chaque étape est suffisant pour que le matériau atteigne son régime stationnaire. Par ailleurs, plus on augmente la valeur  $\dot{\gamma}_2$  du taux de cisaillement appliqué pendant la deuxième période, plus la valeur de la contrainte atteinte en

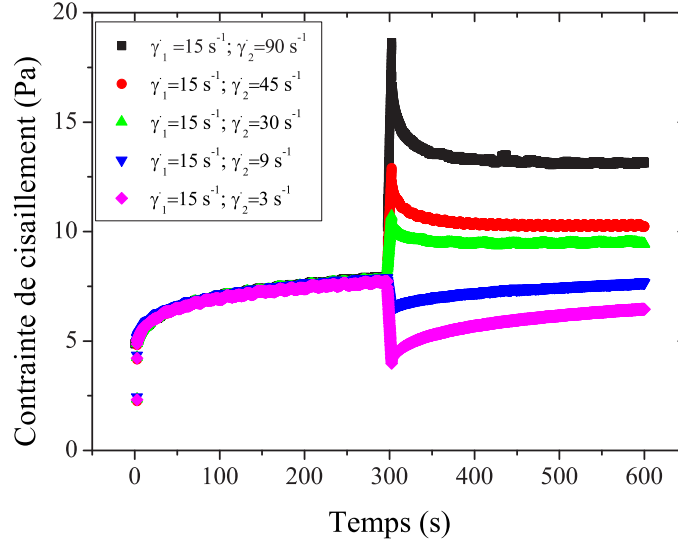


FIG. 5.2 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement lorsqu’une suspension bentonite contenant 3.5% de particules est soumise à des sauts de taux de cisaillement d’un palier  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  à un palier de valeur  $\dot{\gamma}_2$  comprise entre  $3 \text{ s}^{-1}$  et  $90 \text{ s}^{-1}$ . Les expériences ont été effectuées dans une géométrie Plan-Plan.

régime stationnaire diminue pour les cas où  $\dot{\gamma}_2 > \dot{\gamma}_1$  et à l’inverse. Enfin, on a obtenu le même phénomène de structuration et déstructuration du matériau avec les deux géométries Plan - Plan et Cône - Plan. Cela montre qu’il n’y a pas d’influence de la géométrie de mesure sur les résultats obtenus.

On s’intéresse maintenant à l’influence du saut de taux de cisaillement sur la cinétique de structuration et de déstructuration d’une suspension de bentonite. Pour cela, on cherche donc à évaluer le taux de restructuration et déstructuration du matériau pendant la deuxième période, c’est-à-dire, juste après le saut de taux de cisaillement. On considère par la suite que le temps  $t = 0$  est défini à l’instant de l’application de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_2$ . Pour comparer qualitativement le temps caractéristique du taux de structuration d’un matériau thixotrope pour différents taux de cisaillement appliqués, on normalise la réponse en contrainte de cisaillement sur une gamme de valeur comprise entre 0 et 1. La contrainte normalisée est définie

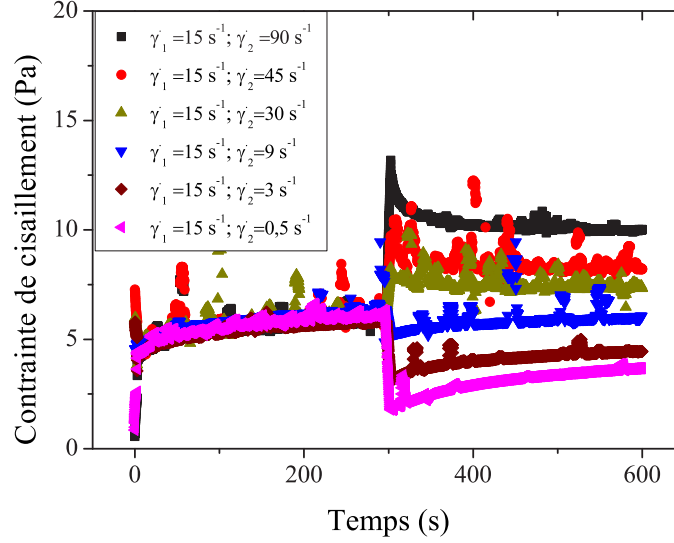


FIG. 5.3 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement lorsqu'une suspension bentonite concentrée à 3.5% est soumise à des sauts de taux de cisaillement avec  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans une géométrie Cône-Plan.

par :

$$\tau^{re}(t) = (\tau(t) - \tau_1) / (\tau_0 - \tau_1) \quad (5.1)$$

où  $\tau(t)$  désigne la contrainte de cisaillement mesurée à l'instant  $t$ ,  $\tau_0$  la contrainte de cisaillement mesurée à l'instant  $t = 0$  et  $\tau_1$  la contrainte de cisaillement mesurée à l'état stationnaire. Il est à noter que les valeurs de  $\tau_0$  et  $\tau_1$  sont définies par les valeurs stables compte tenu de la dispersion des points mesurés. Cette opération de normalisation permet de comparer le taux de structuration/déstructuration du matériau pour différents taux de cisaillement appliqués lorsqu'on part à un état stationnaire bien défini.

On a tracé sur la Fig. 5.4 l'évolution de la contrainte de cisaillement normalisée en fonction du temps pour une suspension de bentonite à 3.5% soumise à des sauts de taux de cisaillement avec  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$  plus élevées que  $\dot{\gamma}_1$ . Les expériences ont été effectuées en utilisant des géométries Cône-Plan et Plan-Plan. Dans la suite du document PP désigne la géométrie Plan-Plan et CP

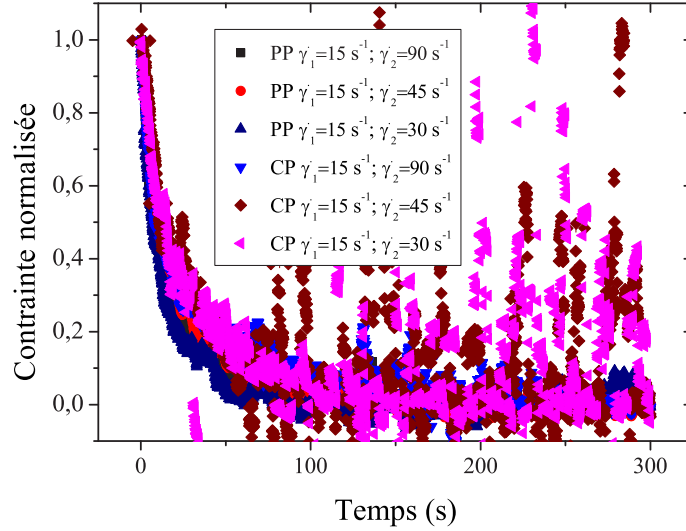


FIG. 5.4 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts croissants de taux de cisaillement avec  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Cône-Plan et Plan-Plan.

la géométrie Cône-Plan. On constate que l'évolution de la contrainte normalisée au cours du temps est la même pour toutes ces expériences ainsi que pour les différentes géométries. La valeur du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_2$  appliquée pour un saut croissant n'affecte pas la cinétique de déstructuration du matériau. Cette observation est surprenante et semble être contradictoire avec le modèle du comportement d'un matériau thixotrope proposé dans Coussot et al. [24].

De la même façon, on a présenté sur la Fig. 5.5 les évolutions de contrainte de cisaillement normalisée mesurée sur une suspension de bentonite à 3.5% soumise à des sauts de taux de cisaillement avec  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$  plus faibles que  $\dot{\gamma}_1$ . On observe de nouveau que les valeurs du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_2$  lorsqu'un saut décroissant est appliqué n'affecte pas la cinétique de structuration du matériau. Les mêmes courbes de contrainte de cisaillement normalisée ont été observées pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Par ailleurs, on constate sur ces deux figures que les données expérimentales sont moins dispersées pour la géométrie Plan-Plan que pour la géométrie Cône-Plan.

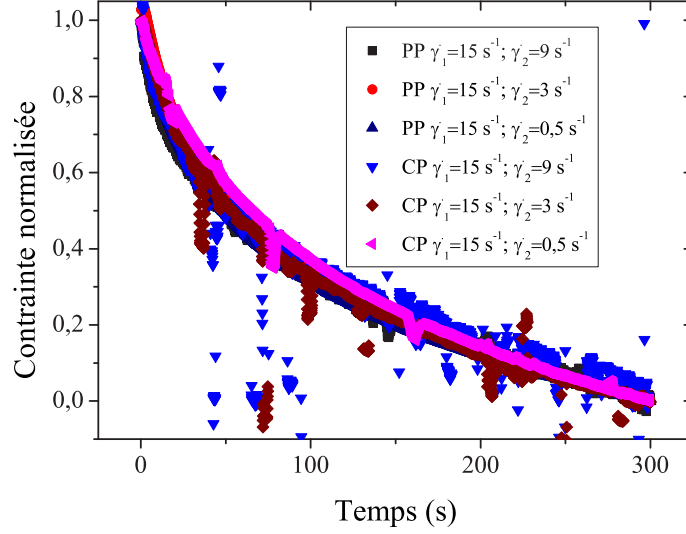


FIG. 5.5 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts décroissants de taux de cisaillement avec  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Cône-Plan et Plan-Plan.

On a tracé sur la Fig. 5.6 l'évolution temporelle de la contrainte de cisaillement normalisée mesurée sur une suspension de bentonite soumise à des sauts de taux de cisaillement de  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  à différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$  plus élevées ou plus faibles que  $\dot{\gamma}_1$ . Les expériences ont été effectuées en utilisant une géométrie Plan-Plan. Il apparaît très clairement sur cette figure que les cinétiques de structuration (mesurées lorsque la valeur de  $\dot{\gamma}_2$  est inférieure à  $\dot{\gamma}_1$ ) et de déstructuration (mesurées lorsque la valeur de  $\dot{\gamma}_2$  est supérieure à  $\dot{\gamma}_1$ ) sont nettement différentes. Par contre, la cinétique de structuration ou de déstructuration du matériau ne dépend pas de l'amplitude du saut. Ces expériences permettent d'établir que la déstructuration du matériau est un phénomène plus rapide que sa structuration.

On a tracé sur la Fig. 5.7 les évolutions de la contrainte de cisaillement normalisée au cours du temps mesurées sur une suspension de bentonite à 3.5% soumise à des sauts décroissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_1$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Toutes les courbes normalisées sont pratiquement identiques. La ciné-

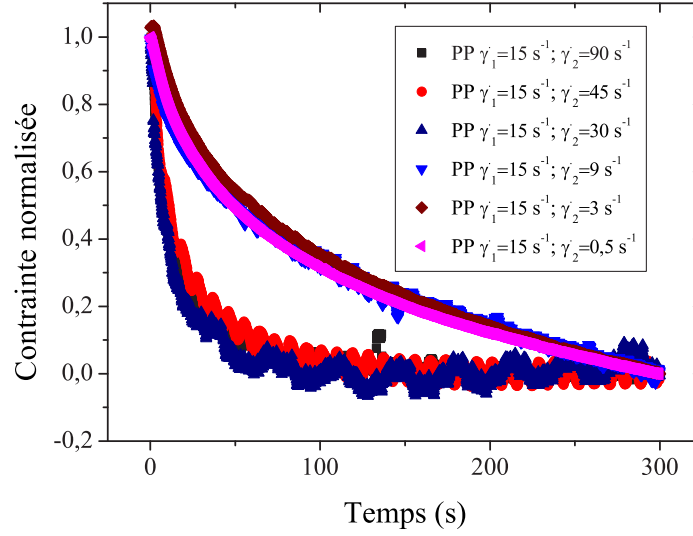


FIG. 5.6 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts de taux de cisaillement avec  $\dot{\gamma}_1 = 15 \text{ s}^{-1}$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Plan-Plan.

tique de structuration du matériau est donc indépendante de la valeur du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_2$  et de la valeur du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_1$ . Elle ne dépend que du type du signe du saut de taux de cisaillement appliqué.

### 5.3.2 Suspension de particules non colloïdales dans un fluide colloïdal thixotrope

#### 5.3.2.1 Etude du saut de taux de cisaillement

On s'intéresse maintenant aux mêmes phénomènes (cinétiques de structuration et de déstructuration lors de l'application d'un saut de vitesse de cisaillement) pour une suspension de particules non colloïdales dispersées dans une bentonite à 3.5 % de concentration. Notre objectif est d'évaluer s'il est possible d'utiliser la relation de localisation du taux de déformation (2.11) pour prédire le comportement de la suspension à partir des résultats expérimentaux obtenus pour la bentonite seule. La suspension étudiée est obtenue en mélangeant 40% en volume de billes de polystyrène



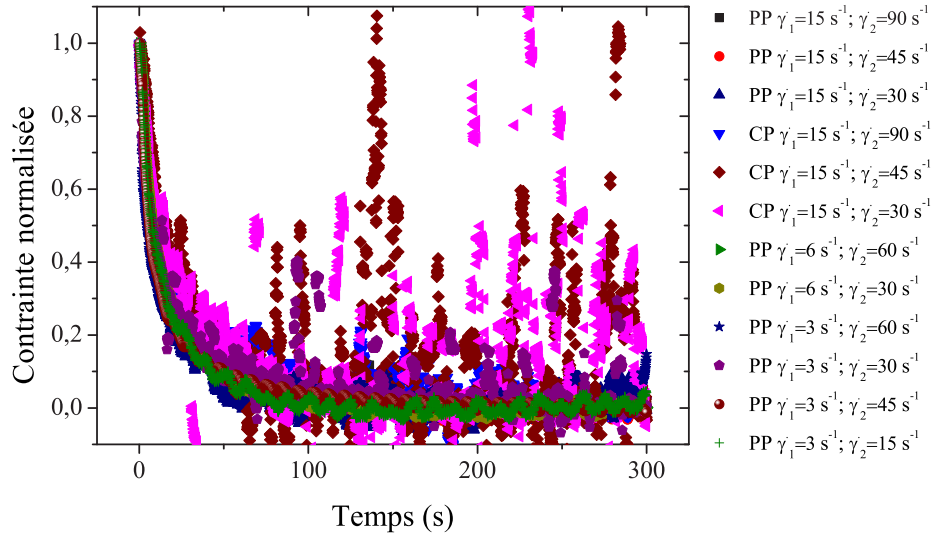


FIG. 5.7 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension bentonite 3.5% est soumise à des sauts croissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_1$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Cône-Plan et Plan-Plan.

d'un diamètre  $40 \mu\text{m}$  avec 60% en volume de bentonite concentrée à 3.5%.

On a tracé sur la Fig. 5.8 l'évolution de la contrainte de cisaillement normalisée en fonction du temps mesurée sur une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite soumise à des sauts de taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_1$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . On a choisi une valeur différente de  $\dot{\gamma}_1$  pour les sauts croissants que pour les sauts décroissants afin de faciliter les comparaisons avec les résultats obtenus pour la bentonite seule dans la suite. Comme pour la bentonite seule, on constate de nouveau que le taux de structuration (lorsqu'on applique un saut décroissant du taux de cisaillement) est le même pour les différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . La même tendance est observée pour le taux de déstructuration (lorsqu'on applique un saut croissant du taux de cisaillement). Les valeurs du taux de cisaillement n'affectent donc pas le taux de structuration ou de déstructuration d'une suspension de particules non colloïdales dans un fluide colloïdal. On retrouve que la cinétique de structuration est différente de la cinétique de restructuration.

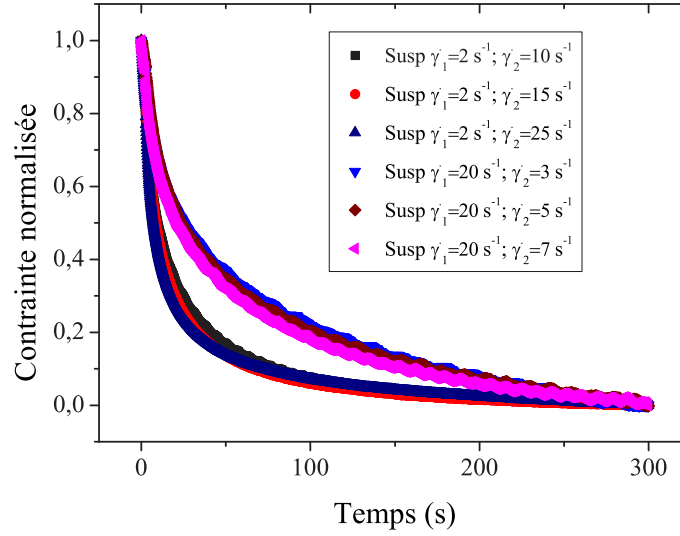


FIG. 5.8 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu’une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite est soumise à des sauts de taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_1$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Plan-Plan.

### 5.3.2.2 Comparaison avec la bentonite

Dans la section (2.2) du chapitre 2, nous avons présenté une relation générale qui relie la viscosité et le seuil d’une suspension de particules plongées dans un fluide à seuil obtenu par une estimation sécante (Chateau et al. [18]). Pour obtenir cette relation, il a été supposé que les particules sont rigides, non colloïdales et qu’il n’existe pas d’interactions physico-chimiques entre les particules et la pâte. Lorsque ces conditions sont satisfaites, la viscosité apparente de la suspension cisailée au taux de déformation macroscopique  $\tilde{D}$  est reliée à la viscosité apparente du fluide suspendant pour une valeur du taux de déformation effectif  $\tilde{d}^{eff}$  par l’équation (2.17) :  $\mu_{app}(\phi, \tilde{D}) = g(\phi)\mu_{app}(\tilde{d}^{eff})$ , où  $g(\phi)$  désigne le coefficient de proportionnalité entre la viscosité macroscopique et la viscosité microscopique d’une suspension linéaire de concentration  $\phi$ . Dans cette relation, une dépendance supplémentaire de la viscosité apparente en  $\phi$  provient de la dépendance de  $\tilde{d}^{eff}$  en  $\phi$ . L’estimation optimale du

taux de déformation effectif  $\tilde{d}^{eff}$  est donnée dans (Chateau et al. [18]) :

$$\tilde{d}^{eff}/\tilde{D} = \sqrt{\frac{g(\phi)}{1-\phi}} \quad (5.2)$$

Dans l'équation (5.2), l'équation (2.33) du chapitre 2, ou bien la solution de l'équation (3.91) du chapitre 3 peuvent être utilisées pour estimer la valeur du  $g(\phi)$ . La quantité  $1 - \phi$  apparaît dans l'équation (5.2) parce que le taux de déformation subi par le fluide suspendant est lié au taux de déformation global à travers un opérateur de moyenne portant uniquement sur le fluide interstitiel.

Dans le but d'étudier l'influence de l'ajout de particules non colloïdales dans un fluide colloïdal thixotrope sur le taux de structuration et de déstructuration de ce dernier, nous avons appliqué à la suspension des sauts de vitesse de cisaillement avec des vitesses  $\dot{\gamma}_1^{sus}$  et  $\dot{\gamma}_2^{sus}$  égale respectivement à  $\dot{\gamma}_1^{ben}/\sqrt{g(\phi)/(1-\phi)}$  et  $\dot{\gamma}_2^{ben}/\sqrt{g(\phi)/(1-\phi)}$ , où  $\dot{\gamma}_1^{ben}$  et  $\dot{\gamma}_2^{ben}$  désignent les valeurs des taux de cisaillement appliqués à la bentonite seule dans les expériences décrites en début de ce chapitre. Les quantités  $\dot{\gamma}_i^{sus}$  désignent les taux de cisaillement imposés aux suspensions tandis que les termes  $\dot{\gamma}_i^{ben}$  désignent les mêmes quantités mais pour la bentonite seule. En pratique, on peut calculer la valeur du coefficient de proportionnalité aussi bien en utilisant l'équation (2.33) que l'équation (3.91) car pour la valeur  $\phi = 0.40$ , la différence est négligeable. Le coefficient reliant le taux de cisaillement effectif dans le fluide  $\tilde{d}^{eff}$  et le taux de cisaillement macroscopique  $\tilde{D}$  appliqué à la suspension non colloïdale est donc égal ici à  $\sqrt{\frac{(1-0.4/0.57)^{-1.43}}{1-0.4}} \simeq 3$ .

Les Fig. 5.9 et Fig. 5.10 présentent la comparaison du taux de structuration et de déstructuration mesurée sur la suspension de particules non colloïdales immergées dans un fluide colloïdal thixotrope les mêmes quantités mesurées sur la bentonite seule pour différentes valeurs de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_1$  et  $\dot{\gamma}_2$ . Comme précédemment, le terme « susp » désigne la suspension non colloïdale tandis que le terme « bent » fait référence à la bentonite seule.

De nouveau, le taux de structuration et de déstructuration ne dépend que du signe du saut de taux de cisaillement. Ceci est valable non seulement pour la bentonite seule mais aussi pour la suspension non colloïdale. De plus, la structuration et la déstructuration sont les mêmes pour la bentonite et pour la suspension lorsqu'on

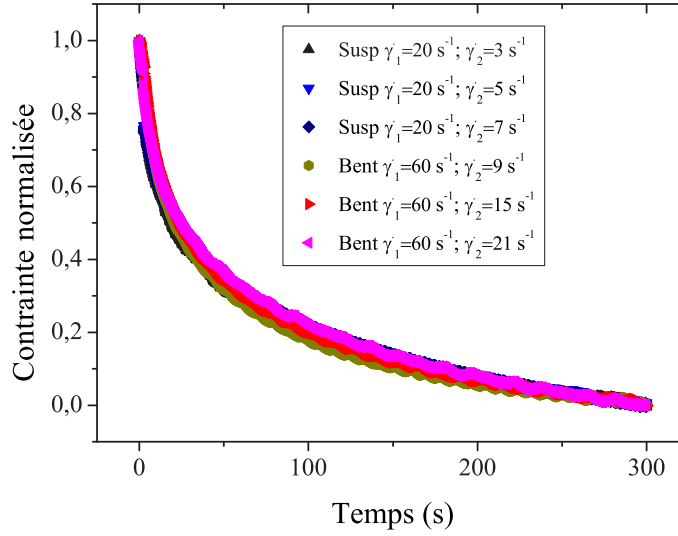


FIG. 5.9 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu’une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite et une bentonite sont soumises à des sauts décroissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_1$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées en utilisant des les géométries Plan-Plan.

applique à la bentonite un taux de cisaillement égal à 3 fois celui appliqué à la suspension. Cette observation valide la pertinence de l’estimation sécante utilisée pour homogénéiser le comportement du matériau aléatoire non linéaire décrite dans Chateau et al. [18]. Les résultats obtenus dans cette section démontre que la méthode de changement d’échelle utilisée pour évaluer l’effet de l’ajout de particules sur le seuil d’une suspension permet également de prendre en compte le caractère thixotrope du fluide porteur. Dans ce cas, la relation de localisation (5.2) permet d’évaluer le taux de structuration du fluide interstitiel en fonction de la vitesse de cisaillement globale de la suspension tandis que l’équation (2.17) permet de calculer la viscosité apparente de la suspension en fonction de celle du fluide suspendant. Les résultats obtenus ici démontrent la pertinence de la démarche initiée dans Mahaut et al. [52]. et Chateau et al. [18] consistant à appliquer les outils de l’homogénéisation non linéaire aux suspensions de particules non newtoniennes.

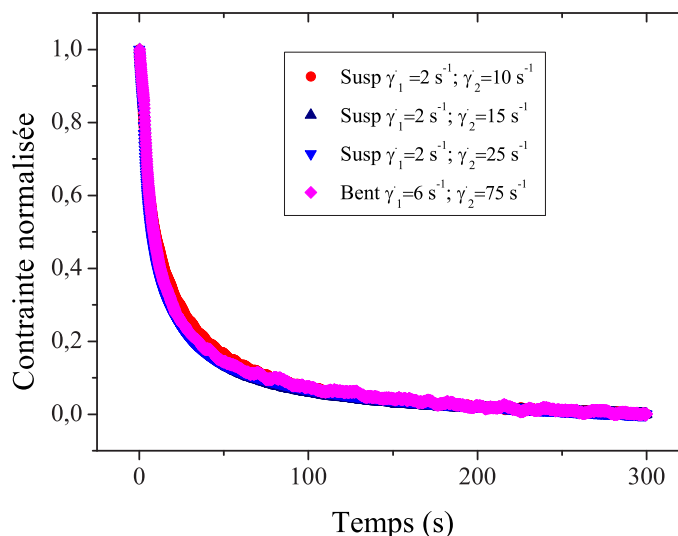


FIG. 5.10 – Réponse temporelle en contrainte de cisaillement normalisée lorsqu'une suspension de particules non colloïdales dans une bentonite et une bentonite sont soumises à des sauts croissants de taux de cisaillement pour différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_1$  et différentes valeurs de  $\dot{\gamma}_2$ . Les expériences ont été effectuées dans les géométries Plan-Plan.

## 5.4 Conclusions

Dans ce dernier chapitre, nous avons étudié expérimentalement l'influence de l'histoire de cisaillement sur la cinétique de structuration et de déstructuration d'un matériau colloïdal thixotrope. Nous avons mis en place un protocole expérimental permettant d'étudier l'influence d'un saut de vitesse de cisaillement sur le taux de structuration et de déstructuration de ces matériaux. Nous avons tout d'abord établi que les taux de structuration et de déstructuration ne dépendent pas des valeurs du taux de cisaillement appliquées au matériau mais qu'ils dépendent du signe du saut de taux de cisaillement.

Nous avons ensuite étendu cette étude aux suspensions de particules non colloïdales dispersées dans un fluide colloïdal thixotrope. Nous avons observé les mêmes tendances pour une suspension de particules non colloïdales dans un fluide thixotrope que pour le fluide colloïdal thixotrope suspendant. Les particules non colloïdales ne

changent donc pas les propriétés de thixotropie du fluide.

La comparaison de la cinétique de structuration et de déstructuration de la suspension non colloïdale et du fluide suspendant permet de valider de nouveau la pertinence de l'estimation sécante du taux de déformation effectif au sein de la phase fluide utilisée dans le cadre d'une approche homogénéisation non linéaire (Chateau et al. [18]). Cette comparaison nous permet également de confirmer ce qui a été trouvé dans le travail de Mahaut [51] : quand les particules non colloïdales suspendues dans un fluide non newtonien interagissent uniquement par des forces hydrodynamiques, leur contribution au comportement global de la suspension peut être estimée en utilisant des relations analytiques simples. Les résultats préliminaires obtenus dans ce travail permettent d'envisager de pouvoir utiliser les relations de localisation (2.17) et (5.2) pour modéliser le comportement de suspension de particules thixotropes à partir d'une « simple » caractérisation du comportement du fluide suspendant. Cette perspective semble particulièrement prometteuse pour la modélisation du comportement des bétons modernes (Bétons AutoPlaçant et Bétons autonivelant) vu comme des suspensions de particules (sable et gravier) dispersées dans un fluide thixotrope. Cette application constituerait une généralisation intéressante d'un point de vue pratique des résultats obtenus par Mahaut et al. [53].

Le travail exposé dans ce chapitre fournit quelques informations sur l'influence de l'histoire de cisaillement sur la structuration et la déstructuration d'un matériau thixotrope. Cependant, le comportement complet d'un tel matériau reste très mal connu. Des approches expérimentale et théorique restent nécessaires afin de mieux comprendre le comportement à l'échelle microscopique ainsi qu'à l'échelle macroscopique de ces matériaux.



---

## Conclusions et perspectives

---

Ce travail est consacré à l'étude du comportement d'une suspension de particules dans un fluide à seuil dans le cadre d'une approche expérimentale et de méthodes de changement d'échelles. On s'est tout d'abord intéressé à une suspension de particules rigides, non colloïdales bidisperses dans un fluide à seuil avant d'aborder le comportement de suspensions colloïdales puis de suspension de particules non colloïdales dans un fluide thixotrope. Des résultats obtenus, nous pouvons tirer les conclusions suivantes.

Tout d'abord, nous avons formulé différentes suspensions bidisperses dans un fluide à seuil modèle. Nous avons étudié le comportement dans un régime solide en mesurant l'évolution du module élastique et du seuil de contrainte en fonction de la concentration en particules rigides. L'effet de la polydispersité a été modélisé par un modèle d'empilement des particules sèches. Nous avons proposé une estimation globale du module d'élasticité par une loi de type Krieger-Dougherty modifiée :

$$G'(\phi, \lambda, \xi)/G' = (1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}$$

En combinant avec le résultat obtenu dans le cadre d'une approche d'homogénéisation non linéaire par Chateau et al. [18] permettant de relier des propriétés non linéaires aux propriétés linéaires d'une suspension, nous avons proposé l'estimation suivante :

$$\tau_c(\phi, \lambda, \xi)/\tau_c = \sqrt{(1 - \phi)(1 - \phi/\phi_m)^{-1.43}}$$

permettant de calculer le seuil de contrainte d'une telle suspension.



Ces estimations sont en bon accord avec nos données expérimentales. Nos résultats, complétant ceux déjà disponibles pour le cas monodisperse, peuvent être appliqués pour caractériser et aider à la formulation de matériaux tels que le béton.

Nous avons prolongé l'étude décrite ci-dessus en mettant en œuvre une approche micromécanique afin de prédire les caractéristiques linéaires d'un matériau composite contenant une forte concentration de particules de tailles différentes. Il est en effet bien connu que les modèles micromécaniques classiques sont incapables de rendre compte de l'effet de la polydispersité et de la fraction volumique maximum d'empilement des inclusions sur les modules macroscopiques de ces matériaux. Nous avons donc mis en œuvre une approche par motifs morphologiques permettant la prise en compte de paramètres géométriques tels que la distribution de tailles ou la distance entre particules voisines. Lorsque les inclusions sont de même taille (cas monodisperse), on retrouve le modèle proposé par [Marcadon, Hervé et Zaoui (2007)]. Notre modèle a été validé expérimentalement en utilisant les données expérimentales de la littérature.

Ensuite, nous avons montré que les modèles morphologiques permettent également de modéliser le phénomène de transition de phase liquide-solide d'une suspension de particules colloïdales présentant une forte d'interaction attractive. Le très bon accord entre la modélisation par motifs morphologiques de l'évolution des propriétés rhéologiques d'une telle suspension et les résultats de l'observation expérimentale montre que l'approche par motifs morphologiques peut être appliquée à une large gamme de situations pratiques.

Enfin, la dernière partie de ce travail est consacrée à l'influence de l'histoire de cisaillement sur la structuration et la déstructuration d'une suspension colloïdale thixotrope. Les résultats obtenus dans cette étude montrent qu'il n'y a pas encore de modèle théorique permettant de modéliser parfaitement le comportement d'un matériau thixotrope. Ces résultats montrent également que pour évaluer la structuration et déstructuration d'une suspension de particules non colloïdales dans un fluide colloïdal thixotrope, il suffit d'étudier les propriétés du fluide suspendant. Les particules non colloïdales ne changent pas les propriétés thixotropes du fluide porteur. Ces observations sont tout à fait cohérentes avec les résultats obtenus dans le travail de Mahaut [51].

A l'issue de cette thèse, nous proposons de poursuivre la démarche dans les directions suivantes :

- Partant des résultats disponibles pour les matériaux linéaires isotropes, nous pouvons prendre en compte l'anisotropie induite par l'écoulement. La source d'anisotropie indépendante de la nature des phases est induite par la distribution spatiale des hétérogénéités. Nous pouvons utiliser l'estimation de Ponte Castañeda et Willis dans le cadre une approche par motifs morphologiques pour décrire cette distribution des particules au sein du volume élémentaire représentatif. Pour cela, il nous faut résoudre le problème de localisation quand la forme de l'inclusion inhomogène n'est plus sphérique mais ellipsoïdale. Une procédure numérique sera nécessaire pour traiter ce problème. Les résultats obtenus pourraient être comparés avec les données expérimentales.
- Dans le but d'optimiser les procédés de formulation du béton, une étude expérimentale pourrait être menée pour étudier l'influence de l'histoire de cisaillement sur les propriétés rhéologiques d'une suspension colloïdale thixotrope. Une propriété bien connue des matériaux thixotropes est que plus on cisaille le matériau, plus sa viscosité apparente diminue. Cette propriété est utilisée pour optimiser les procédés de mise en place du béton. Nous avons montré que les particules non colloïdales ne modifient pas les propriétés thixotropes du fluide porteur, mais renforcent ses propriétés mécaniques lorsqu'il est soumis à des sauts de vitesse de cisaillement suffisamment espacés en temps pour que des régimes stationnaires s'établissent entre deux modifications de la sollicitation appliquée. A partir de ce résultat, il reste nécessaire d'effectuer des expériences complémentaires non seulement sur le fluide porteur mais aussi en présence des particules non colloïdales pour pouvoir disposer de résultats précis. Nos résultats préliminaires montrent que cette direction d'étude est très prometteuse. Une difficulté à résoudre est de réussir à mettre en place un protocole expérimental rigoureux permettant d'obtenir des résultats reproductibles dans toutes les situations.
- Il est également possible d'étudier l'influence de la forme des particules. Pour avoir des résultats propres, dans un premier temps on pourra étudier l'influence de l'ajout de particules de forme quelconque comme des sables, des cailloux dans un fluide à seuil modèle. D'un point de vue théorique, l'interaction géométrique

de ces particules peut être prise en compte en utilisant un modèle d'empilement sec.

- Enfin, nos résultats sur la caractérisation de la cinétique de structuration et de déstructuration d'une bentonite démontre qu'une modélisation satisfaisante du comportement d'un tel matériau reste encore à construire.

---

## Bibliographie

---

- [1] C. Ancey and H. Jorrot. Yield stress for particle suspensions within a clay dispersion. *Journal of Rheology*, 45 :297, 2001.
- [2] J. Assaad, K.H. Khayat, and H. Mesbah. Assessment of thixotropy of flowable and self-consolidating concrete. *ACI Materials Journal*, 100(2), 2003.
- [3] R.C. Ball and P. Richmond. Dynamics of colloidal dispersions. *Physics and Chemistry of Liquids*, 9(2) :99–116, 1980.
- [4] H.A. Barnes. Thixotropy—a review. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 70(1-2) :1–33, 1997.
- [5] H.A. Barnes and Q.D. Nguyen. Rotating vane rheometry—a review. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 98(1) :1–14, 2001.
- [6] GK Batchelor. The effect of Brownian motion on the bulk stress in a suspension of spherical particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 83 :97–117, 1977.
- [7] GK Batchelor and JT Green. The hydrodynamic interaction of two small freely-moving spheres in a linear flow field. *J. Fluid Mech*, 56(2) :375–400, 1972.
- [8] R. Ben Aïm and P. Le Goff. Effet de paroi dans les empilement désordonnées de sphères et application à la porosité de mélange binaires. *Power Technology*, (1) :281–290, 1967.
- [9] M. Bornert. *Morphologie microstructurale et comportement mécanique ; caractérisations expérimentales, approches par bornes et estimations autocohérentes généralisées*. PhD thesis, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 1996.

- [10] M. Bornert, T. Bretheau, and P. Gilormini. Homogénéisation en mécanique des matériaux 1 : matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques (Traité MIM, série alliages métalliques, Alliages Métalliques). *Hermes Science, Paris*, 2001.
- [11] M. Bornert, T. Bretheau, and P. Gilormini. Homogénéisation en mécanique des matériaux 2 : Comportements non linéaires et problèmes ouverts (Traité MIM, série alliages métalliques). *Hermes Science, Paris*, 2001.
- [12] M. Bornert, C. Stolz, and A. Zaoui. Morphologically representative pattern-based bounding in elasticity. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44(3) :307–331, 1996.
- [13] G. Bossis and J.F. Brady. Dynamic simulation of sheared suspensions. I. General method. *The Journal of Chemical Physics*, 80 :5141, 1984.
- [14] B. Bournonville, P. Coussot, and X. Chateau. Modification du modèle de Farris pour la prise en compte des interactions géométriques d'un mélange polydisperse de particules, 2005.
- [15] J.F. Brady. Computer simulation of viscous suspensions. *Chemical Engineering Science*, 56(9) :2921–2926, 2001.
- [16] JF Brady and G. Bossis. Stokesian dynamics. *Annual review of fluid mechanics*, 20(1) :111–157, 1988.
- [17] C. Chang and R.L. Powell. Effect of particle size distributions on the rheology of concentrated bimodal suspensions. *Journal of Rheology*, 38 :85, 1994.
- [18] X. Chateau, G. Ovarlez, and K.L. Trung. Homogenization approach to the behavior of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology*, 52 :489, 2008.
- [19] JS Chong, EB Christiansen, and AD Baer. Rheology of concentrated suspensions. *Journal of Applied Polymer Science*, 15(8) :2007–2021, 1971.
- [20] KH Christensen et al. Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 27(4) :315–330, 1979.
- [21] S. Cohen-Addad, M. Krzan, R. H  
"ohler, and B. Herzhaft. Rigidity percolation in particle-laden foams. *Physical review letters*, 99(16) :168001, 2007.
- [22] P. Coussot. *Rheometry of pastes, suspensions, and granular materials : applications in industry and environment*. John Wiley and Sons, 2005.

- [23] P. Coussot and C. Ancey. *Rhéophysique des pâtes et des suspensions*. EDP Sciences Editions, 1999.
- [24] P. Coussot, Q.D. Nguyen, HT Huynh, and D. Bonn. Viscosity bifurcation in thixotropic, yielding fluids. *Journal of Rheology*, 46 :573, 2002.
- [25] P. Coussot and N. Roussel. Quantification de la thixotropie des matériaux cimentaires et de ses effets. *Revue Européenne de Génie Civil*, 10(1) :45–63, 2006.
- [26] P. Coussot, H. Tabuteau, X. Chateau, L. Tocquer, and G. Ovarlez. Aging and solid or liquid behavior in pastes. *Journal of Rheology*, 50 :975, 2006.
- [27] DJ Cumberland and RJ Crawford. *The packing of particles*. Amsterdam, 1987.
- [28] F. De Larrard. *Concrete mixture proportioning : a scientific approach*. Taylor & Francis, 1999.
- [29] JA Dodds. The porosity and contact points in multicomponent random sphere packings calculated by a simple statistical geometric model. *Journal of colloid and interface science*, 77(2) :317–327, 1980.
- [30] KJ Dong, RY Yang, RP Zou, and AB Yu. Role of interparticle forces in the formation of random loose packing. *Physical review letters*, 96(14) :145505, 2006.
- [31] L. Dormieux, D. Kondo, and F.J. Ulm. *Microporomechanics*. John Wiley & Sons Inc, 2006.
- [32] K. Dullaert and J. Mewis. Thixotropy : Build-up and breakdown curves during flow. *Journal of Rheology*, 49 :1213, 2005.
- [33] N.Q. Dzuy and DV Boger. Yield stress measurement for concentrated suspensions. *Journal of Rheology*, 27 :321, 1983.
- [34] N.Q. Dzuy and DV Boger. Direct yield stress measurement with the vane method. *Journal of Rheology*, 29 :335, 1985.
- [35] A. Einstein. Eine neue Bestimmung der Moleküldimensionen. *Annalen der Physik*, 324 :289–306, 1906.
- [36] J.D. Eshelby. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, 241(1226) :376–396, 1957.
- [37] RJ Farris. Prediction of the viscosity of multimodal suspensions from unimodal viscosity data. *Journal of Rheology*, 12 :281, 1968.

- [38] Groupe français de rhéologie. Paris. Dictionnaire de rhéologie. 1988.
- [39] NA Frankel and A. Acrivos. On the viscosity of a concentrated suspension of solid spheres. *Chemical Engineering Science*, 22(6) :847–853, 1967.
- [40] M.R. GEIKER, M. BRANDL, L.N. THRANE, and L.F. NIELSEN. On the effect of coarse aggregate fraction and shape on the rheological properties of self-compacting concrete. *Cement, concrete and aggregates*, 24(1) :3–6, 2002.
- [41] P. Gondret and L. Petit. Dynamic viscosity of macroscopic suspensions of bimodal sized solid spheres. *Journal of Rheology*, 41(6) :1261–1274, 1997.
- [42] Z. Hashin. The elastic moduli of heterogeneous materials, J. oppl, 1962.
- [43] Z. Hashin and S. Shtrikman. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, pages 127–140, 1963.
- [44] E. Herve and A. Zaoui. Modelling the effective behavior of nonlinear matrix-inclusion composites. *European journal of mechanics. A. Solids*, 9(6) :505–515, 1990.
- [45] E. Herve and A. Zaoui. N-layered inclusion-based micromechanical modelling. *International Journal of Engineering Science*, 31(1) :1–10, 1993.
- [46] DW Hobbs. Influence of aggregate volume concentration upon the workability of concrete and some predictions from the viscosity-elasticity analogy. *Magazine of concrete research*, 28(97) :191–202, 1976.
- [47] I.M. Krieger and T.J. Dougherty. A mechanism for non-Newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Journal of Rheology*, 3 :137–152, 1959.
- [48] R.G. Larson. The structure and rheology of complex fluids. *Applied Rheology*, 2000.
- [49] P.F. Luckham and S. Rossi. The colloidal and rheological properties of bentonite suspensions. *Advances in Colloid and Interface Science*, 82(1-3) :43–92, 1999.
- [50] T.K. Luu. *Approche par changement d'échelle des caractéristiques rhéologiques d'une suspension de particules dans un fluide à seuil*. PhD thesis, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 2009.
- [51] F. Mahaut. *Comportement rhéologique de suspensions de particules non colloïdales plongées dans des fluides à seuil*. PhD thesis, Université Paris-Est, 2009.

- [52] F. Mahaut, X. Chateau, P. Coussot, and G. Ovarlez. Yield stress and elastic modulus of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology*, 52 :287, 2008.
- [53] F. Mahaut, S. Mokéddem, X. Chateau, N. Roussel, and G. Ovarlez. Effect of coarse particle volume fraction on the yield stress and thixotropy of cementitious materials. *Cement and concrete research*, 38(11) :1276–1285, 2008.
- [54] V. Marcadon, E. Herve, and A. Zaoui. Micromechanical modeling of packing and size effects in particulate composites. *International Journal of Solids and Structures*, 44(25-26) :8213–8228, 2007.
- [55] AB Metzner. Rheology of suspensions in polymeric liquids. *Journal of Rheology*, 29 :739, 1985.
- [56] J. Mewis. Thixotropy-a general review. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 6(1) :1–20, 1979.
- [57] J. Mewis and CW Macosko. Rheology : principles, measurements and applications, 1994.
- [58] GW Milton and N. Phan-Thien. New bounds on effective elastic moduli of two-component materials. *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences*, 380(1779) :305, 1982.
- [59] T. Mori and K. Tanaka. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica*, 21(5) :571–574, 1973.
- [60] A. Mujumdar, A.N. Beris, and A.B. Metzner. Transient phenomena in thixotropic systems. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 102(2) :157–178, 2002.
- [61] AM Neville. Properties of Concrete, Pitman Publ. Ltd, London, 1981.
- [62] QD Nguyen and DV Boger. Measuring the flow properties of yield stress fluids. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 24(1) :47–88, 1992.
- [63] L.F. NIELSEN. Rheology of some fluid extreme composites : Such as fresh self-compacting concrete. *Nordic concrete research*, 27 :83–94, 2001.
- [64] AN Norris, AJ Callegari, and P. Sheng. A generalized differential effective medium theory. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 33(6) :525–543, 1985.
- [65] G.Y. Onoda and E.G. Liniger. Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset. *Physical Review Letters*, 64(22) :2727–2730, 1990.



- [66] S. Out. Bulk properties of composite media. II. Evaluation of bounds on the shear modulus of suspensions of impenetrable spheres. *Journal of Applied Physics*, 62(10) :4135–4141, 1987.
- [67] G. Ovarlez, Q. Barral, and P. Coussot. Three-dimensional jamming and flows of soft glassy materials. *Nature Materials*, 2010.
- [68] G. Ovarlez, F. Bertrand, and S. Rodts. Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging. *Journal of Rheology*, 50 :259, 2006.
- [69] G. Ovarlez and X. Chateau. Influence of shear stress applied during flow stoppage and rest period on the mechanical properties of thixotropic suspensions. *Physical Review E*, 77(6) :61403, 2008.
- [70] G. Ovarlez and P. Coussot. Physical age of soft-jammed systems. *Physical Review E*, 76(1) :11406, 2007.
- [71] N. Phan-Thien and DC Pham. Differential multiphase models for polydispersed suspensions and particulate solids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 72(2-3) :305–318, 1997.
- [72] P. Ponte Castaneda. Nonlinear composite materials : effective constitutive behavior and microstructure evolution. *COURSES AND LECTURES-INTERNATIONAL CENTRE FOR MECHANICAL SCIENCES*, pages 131–196, 1997.
- [73] RF Probstein, MZ Sengun, and T.C. Tseng. Bimodal model of concentrated suspension viscosity for distributed particle sizes. *Journal of Rheology*, 38 :811, 1994.
- [74] N. Roquet and P. Saramito. An adaptive finite element method for Bingham fluid flows around a cylinder. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 192(31-32) :3317–3341, 2003.
- [75] C. Servais, R. Jones, and I. Roberts. The influence of particle size distribution on the processing of food. *Journal of food engineering*, 51(3) :201–208, 2002.
- [76] A.P. Shapiro and R.F. Probstein. Random packings of spheres and fluidity limits of monodisperse and bidisperse suspensions. *Physical review letters*, 68(9) :1422–1425, 1992.
- [77] J.J. Stickel and R.L. Powell. Fluid mechanics and rheology of dense suspensions. 2005.

- [78] C. Stolz and A. Zaoui. Analyse morphologique et approches variationnelles du comportement d'un milieu élastique hétérogène= Combined variational approach and morphological analysis to the behaviour of inhomogeneous elastic media. *Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série 2, Mécanique, Physique, Chimie, Sciences de l'univers, Sciences de la Terre*, 312(3) :143–150, 1991.
- [79] RF Storms, BV Ramarao, and RH Weiland. Low shear rate viscosity of bimodally dispersed suspensions. *Powder technology*, 63(3) :247–259, 1990.
- [80] M. Buil Stovall, T. and Ch. Such. Viscosité des suspensions multimodales. In *Journées Physique - Les milieux granulaires*, pages 73–78, 1987.
- [81] T. Stovall, F. De Larrard, and M. Buil. Linear packing density model of grain mixtures. *Powder Technology*, 48(1) :1–12, 1986.
- [82] P. Suquet. Effective properties of nonlinear composites. In *Continuum micromechanics*, page 264. Springer-Verlag New York, Inc., 1997.
- [83] J.P. Tignol. *Galois' theory of algebraic equations*. World Scientific Pub Co Inc, 2001.
- [84] E.A. Toorman. Modelling the thixotropic behaviour of dense cohesive sediment suspensions. *Rheologica Acta*, 36(1) :56–65, 1997.
- [85] S. Torquato. *Random Heterogeneous Materials. Microstructure and Macroscopic Properties. Interdisciplinary Applied Mathematics. 16*. New York, NY : Springer, 2001.
- [86] S. Torquato and F. Lado. Effective properties of two-phase disordered composite media : II. Evaluation of bounds on the conductivity and bulk modulus of dispersions of impenetrable spheres. *Physical Review B*, 33(9) :6428–6435, 1986.
- [87] J. Vermant and MJ Solomon. Flow-induced structure in colloidal suspensions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17 :R187, 2005.
- [88] T.-S. Vu, G. Ovarlez, and Chateau X. Macroscopic behavior of bidisperse suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology*, 54 :815–833, 2010.
- [89] LJ Walpole. Elastic behavior of composite materials : theoretical foundations. *Adv. Appl. Mech*, 21 :169–242, 1981.
- [90] KA Weidenmann, R. Tavangar, and L. Weber. Rigidity of diamond reinforced metals featuring high particle contents. *Composites Science and Technology*, 69(10) :1660–1666, 2009.

- [91] Z. Yu and A. Wachs. A fictitious domain method for dynamic simulation of particle sedimentation in Bingham fluids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 145(2-3) :78–91, 2007.
- [92] A. Zaoui. *Matériaux hétérogènes et composites*. Ecole Polytechnique, 2000.
- [93] A. Zaoui. Continuum micromechanics : survey. *Journal of Engineering Mechanics*, 128 :808, 2002.